

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/002697

International filing date: 21 February 2005 (21.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-068230  
Filing date: 10 March 2004 (10.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 24 March 2005 (24.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

02.03.2005

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 3月10日  
Date of Application:

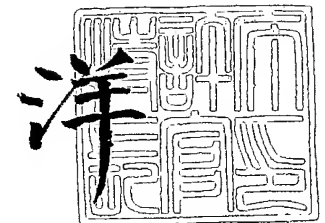
出願番号 特願2004-068230  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP2004-068230]

出願人 日本電気株式会社  
Applicant(s):

2005年 1月18日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2005-3000539

【書類名】 特許願  
【整理番号】 34103854  
【提出日】 平成16年 3月10日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01M 8/00  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 佐々木 英明  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 中村 新  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 関野 省治  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 久保 佳実  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000004237  
    【氏名又は名称】 日本電気株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100110928  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 速水 進治  
    【電話番号】 03-5784-4637  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 138392  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0110433

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

固形または液体の燃料が配置される燃料電池用の容器であって、  
前記容器内に収容された前記燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 2】**

固形または液体の燃料が配置される燃料配置部と、  
前記燃料配置部に連通し、前記燃料を気化する気化部と、  
前記気化部で気化した気化燃料を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口と、  
を有することを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 に記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に、気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 4】**

請求項 1 乃至 3 いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、  
固形または液体の前記燃料が配置される燃料収容室と、  
前記燃料収容室で気化した前記燃料の蒸気を収容する気化室と、  
を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 5】**

請求項 4 に記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料収容室と前記気化室とが気液分離膜により区画されていることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 6】**

請求項 1 乃至 5 いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料は、有機液体燃料の固化化物であることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 7】**

請求項 1 乃至 6 いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料電池に着脱可能に設けられる燃料電池用燃料カートリッジであることを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 8】**

請求項 1 乃至 7 いずれかに記載の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に開閉可能なシャッター部材が設けられたことを特徴とする燃料電池用燃料容器。

**【請求項 9】**

燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記液体燃料供給系に気体燃料を補給する気化燃料補給部と、を有し、前記液体燃料供給系と前記気化燃料補給部との間に、前記気化燃料を選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池。

**【請求項 10】**

燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、請求項 1 乃至 8 いずれかに記載の燃料電池用燃料容器と、を備え、前記燃料電池用燃料容器と前記液体燃料供給系との間に、前記燃料の蒸気を前記液体燃料供給系に選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池。

**【請求項 11】**

請求項 9 または 10 に記載の燃料電池において、前記液体燃料供給系への気化燃料の補給を開始および停止するシャッター部材を有することを特徴とする燃料電池。

**【請求項 12】**

請求項 10 に記載の燃料電池において、  
前記燃料供給系は、  
前記燃料極に供給される液体燃料が収容される燃料カートリッジと、  
前記燃料極または前記酸化剤極から排出される液体を回収する燃料回収部と、を備え、

前記燃料電池用燃料容器が、前記燃料カートリッジと前記燃料回収部とに連通する液体燃料混合槽に前記燃料の蒸気を供給するように構成されたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 1 3】

燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する燃料供給系と、を有する燃料電池の運転方法であって、前記燃料供給系に、前記燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気体燃料を供給しながら運転を行うことを特徴とする燃料電池の運転方法。

【請求項 1 4】

請求項 1 3 に記載の燃料電池の運転方法において、前記燃料極を通過した残存燃料または酸化剤極で発生した水を回収しながら前記液体燃料を循環させて運転することを特徴とする燃料電池の運転方法。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用燃料容器、それを用いた燃料電池、および燃料電池の運転方法

## 【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、燃料電池用燃料容器、それを用いた燃料電池、および燃料電池の運転方法に関する。

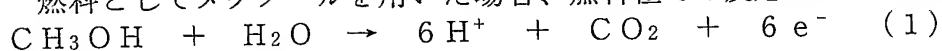
## 【背景技術】

【0 0 0 2】

固体電解質型燃料電池は、燃料極および酸化剤極と、これらの間に設けられた固体電解質膜から構成され、燃料極には燃料が、酸化剤極には酸化剤が供給されて電気化学反応により発電する。燃料極および酸化剤極は、基材と、基材表面に備えられた触媒層とを含む。燃料としては、一般的には水素が用いられるが、近年、安価で取り扱いの容易なメタノールを原料として、メタノールを改質して水素を生成させるメタノール改質型や、メタノールを燃料として直接利用する直接型の燃料電池の開発も盛んに行われている。

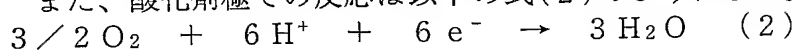
【0 0 0 3】

燃料としてメタノールを用いた場合、燃料極での反応は以下の式(1)のようになる。



【0 0 0 4】

また、酸化剤極での反応は以下の式(2)のようになる。



【0 0 0 5】

このように、直接型の燃料電池では、メタノール水溶液から水素イオンを得ることができるので、改質器などが不要になり、小型化及び軽量化を図ることができる。また、液体のメタノール水溶液を燃料とするため、エネルギー密度が非常に高いという特徴がある。

【0 0 0 6】

特許文献1には、液体燃料を収容する液体燃料収容容器から外部の燃料電池に液体燃料を供給する技術が開示されている。特許文献1の燃料電池では、液体燃料収容容器に収容された液体燃料が導入管から本体に供給され、本体の気化部で気化された後、燃料極に導入される。

【0 0 0 7】

ところが、この燃料電池では、液体燃料収容容器中の液体燃料は、本体において燃料極の手前に設けられた気化部で気化し、燃料極に導入される構成となっている。このため、燃料極に供給する燃料を所定の濃度に調節するという点で改善の余地があった。

【0 0 0 8】

一方、特許文献2には、単電池セルに供給する液体燃料を貯蔵する燃料タンクに加え、高濃度メタノールタンクを有する燃料電池が開示されている。ところが、この場合、高濃度メタノールタンクに収容されている高濃度メタノールをポンプで燃料タンクに供給し、単電池セルに供給される液体燃料が所定の濃度になるように調整する必要があった。このため、装置構成が大型化、複雑化してしまっていた。

【特許文献1】特開2001-93551号公報

【特許文献2】特開2003-132924号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 9】

本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行う技術を提供することにある。

## 【課題を解決するための手段】

【0 0 1 0】

本発明によれば、固形または液体の燃料が配置される燃料電池用の容器であって、前記容器内に収容された前記燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給

口を備えることを特徴とする燃料電池用燃料容器が提供される。

【0011】

本発明に係る燃料電池用燃料容器は、燃料ガス補給口を備える。燃料電池の燃料極への燃料の供給は、液体燃料供給系から行われる。このため、容器内に収容された燃料の蒸気を燃料電池の液体燃料供給系に溶解させて、燃料極に確実に補給することができる。液体燃料供給系に収容された液体燃料の燃料成分濃度が燃料電池の使用に伴い低下した際に、これを補給することができるため、液体燃料供給系の燃料濃度を安定化することができる。また、燃料の蒸気を液体燃料中に溶解させて補給するため、液体燃料供給系に燃料成分を補給するためのポンプ等の補器を用いることなく燃料を安定的に補給することができる。このため、本発明の燃料電池用燃料容器を用いることにより、簡素な構成で液体燃料供給型の燃料電池を安定的に運転することができる。

【0012】

本発明によれば、固形または液体の燃料が配置される燃料配置部と、前記燃料配置部に連通し、前記燃料を気化する気化部と、前記気化部で気化した気化燃料を燃料電池の液体燃料供給系に補給する燃料ガス補給口と、を有することを特徴とする燃料電池用燃料容器が提供される。

【0013】

本発明に係る燃料電池用燃料容器は、燃料配置部と気化部を有する。このため、燃料配置部に高濃度の液体または固形燃料を配置し、これを気化部で気化して液体燃料供給系に補給することができる。このため、簡素な構成で燃料電池の液体燃料供給系の燃料濃度の低下を好適に抑制することができる。

【0014】

本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に、気液分離部が設けられた構成とすることができる。こうすることにより、燃料電池の液体燃料供給系に、容器内で気化した燃料を選択的に補給することができる。本発明において、気液分離部がたとえば気液分離膜を有する構成とすることができる。

【0015】

本発明の燃料電池用燃料容器において、固形または液体の前記燃料が配置される燃料収容室と、前記燃料収容室で気化した前記燃料の蒸気を収容する気化室と、を備える構成とすることができる。燃料収容室と気化室を設けることにより、燃料容器内にさらに確実に固形または液体燃料を保持するとともに、これを気化して燃料電池の液体燃料供給系に安定的に補給することができる。

【0016】

本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料収容室と前記気化室とが気液分離膜により区画されていてもよい。こうすれば、気化室内に気化燃料を選択的に配置することができる。このため、液体燃料供給系に気化燃料をさらに確実に補給することができる。

【0017】

本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料は、有機液体燃料の固形化物であってもよい。こうすることにより、燃料成分を高濃度で含有する場合にも、容器外部への燃料成分の漏洩を抑制することができる。このため、燃料電池用燃料容器の使用時の安全性を向上させることができる。また、希薄な液体燃料を容器内に収容する場合に比べて燃料容器を小型化することができる。

【0018】

本発明の燃料電池用燃料容器は、前記燃料電池に着脱可能に設けられる燃料電池用燃料カートリッジであってもよい。本発明に係る燃料電池用燃料容器は小型で制御性に優れた燃料補給が可能であるため、これを携帯可能な燃料電池用燃料カートリッジとすることにより、携帯型電気機器に適用される燃料電池等に好適に用いることができる。

【0019】

本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記液体燃料供給系に気体燃料を補給する気化燃料補給部と、を有し、前記液体燃料供給系と

前記気化燃料補給部との間に、前記気化燃料を選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池が提供される。

#### 【0020】

また、本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系と、前記燃料電池用燃料容器と、を備え、前記燃料電池用燃料容器と前記液体燃料供給系との間に、前記燃料の蒸気を前記液体燃料供給系に選択的に移動させる気液分離部が設けられたことを特徴とする燃料電池が提供される。

#### 【0021】

本発明に係る燃料電池は、燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給系に気化燃料を補給する気化燃料補給部を有する。また、本発明に係る燃料電池は、上記燃料電池用燃料電池容器を備え、気液分離部を介して容器内の燃料の蒸気が液体燃料供給系に補給される。このため、液体燃料供給系の燃料濃度の低下を抑制することができる。また、気化燃料を燃料極に直接供給せずに、気液分離部を経由させて一度液体燃料に溶解させてから燃料極に供給するため、燃料極に供給する燃料成分の濃度を安定化することができる。このため、燃料を補給するためのポンプや燃料電池の出力を安定化するための補助電源等の補器を設ける必要がない。よって、燃料電池の装置構成全体を簡素化、小型化することができる。

#### 【0022】

本発明の燃料電池用燃料容器において、前記燃料ガス補給口に開閉可能なシャッター部材が設けられた構成とすることができる。また、本発明の燃料電池において、前記液体燃料供給系への気化燃料の補給を開始および停止するシャッター部材を有する構成とすることができる。こうすることにより、燃料電池の使用状況に応じてシャッター部材を開閉し、気化燃料の液体燃料供給系への補給を調節することができる。このため、液体燃料供給系への気化燃料の補給をより一層制御性よく行うことができる。

#### 【0023】

本発明の燃料電池において、前記燃料供給系は、前記燃料極に供給される液体燃料が収容される燃料カートリッジと、前記燃料極または前記酸化剤極から排出される液体を回収する燃料回収部と、を備え、前記燃料電池用燃料容器が、前記燃料カートリッジと前記燃料回収部とに連通する液体燃料混合槽に前記燃料の蒸気を供給するように構成されてもよい。液体燃料混合槽に燃料の蒸気が供給される構成とすることにより、混合槽に収容された液体燃料の濃度の低下を抑制することができる。このため、燃料極または酸化剤極を通過した液体を混合槽に回収して再度燃料極に供給する燃料の循環経路を有する燃料電池においても、燃料極に供給する液体燃料の濃度を安定化することができる。

#### 【0024】

本発明によれば、燃料極と、前記燃料極に液体燃料を供給する燃料供給系と、を有する燃料電池の運転方法であって、前記燃料供給系に、前記燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気体燃料を供給しながら運転を行うことを特徴とする燃料電池の運転方法が提供される。

#### 【0025】

本発明においては、燃料極に供給される前記液体燃料の濃度より高濃度の気体燃料を供給しながら燃料電池を運転するため、運転中に使用された燃料を気体燃料として液体燃料に溶解させて補給することができる。このため、簡便な方法で燃料極への燃料供給を安定的に行うことができる。このため、燃料電池を長期間安定的に運転することができる。

#### 【0026】

本発明の燃料電池の運転方法において、前記燃料極を通過した残存燃料または酸化剤極で発生した水を回収しながら前記液体燃料を循環させて運転することができる。残存燃料または水を回収しながら液体燃料を循環させて運転させる際にも、気体燃料を補給しながら運転を行うことにより、燃料極への燃料供給を安定化することができる。

#### 【0027】

なお、これらの各構成の任意の組み合わせや、本発明の表現を方法、装置などの間で変



換したのもまた本発明の態様として有効である。

#### 【発明の効果】

##### 【0028】

以上説明したように、本発明によれば、燃料電池の液体燃料供給系に気体燃料を補給することにより、燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行う技術が実現される。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

##### 【0029】

以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。なお、すべての図面において、共通の構成要素には同一の符号を付し、適宜説明を省略する。

##### 【0030】

###### (第一の実施形態)

図1は、本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。図1の燃料電池1516は、単セル構造101、液体燃料容器1517、気化燃料容器1518、気液分離膜1519、および気化燃料導入部1520を備える。図1では、単セル構造101を一つ備える構成が例示されているが、第二の実施形態以降で後述するように、複数の単セル構造101を備える構成とすることもできる。

##### 【0031】

単セル構造101は、燃料極102、酸化剤極108および固体電解質膜114を含む。図1の燃料電池においては、燃料極102に液体燃料容器1517中の燃料124が直接供給される。

##### 【0032】

固体電解質膜114は、燃料極102と酸化剤極108を隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体電解質膜114は、水素イオンの伝導性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって機械的強度が高いことが好ましい。固体電解質膜114を構成する材料としては、スルホン基、リン酸基等の強酸基や、カルボキシル基等の弱酸基等の極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子として、スルホン化ポリ(4-フェノキシベンゾイル-1,4-フェニレン)、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾール等の芳香族縮合系高分子；スルホン基含有パーフルオロカーボン(ナフィオン(デュポン社製)(登録商標)、アシブレックス(旭化成社製))；カルボキシル基含有パーフルオロカーボン(フレミオンS膜(旭硝子社製)(登録商標))；スルホン化ポリエーテルエーテルケトン；スルホン化ポリエーテルスルホン；等が例示される。

##### 【0033】

燃料極102および酸化剤極108は、それぞれ、触媒を担持した炭素粒子と固体電解質の微粒子とを含む燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112をそれぞれ基体104および基体110上に形成した構成とすることができる。触媒としては、白金や白金とルテニウムの合金等が例示される。燃料極102および酸化剤極108の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもよい。

##### 【0034】

燃料極側触媒層106の触媒としては、白金、金、銀、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、コバルト、ニッケル、レニウム、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウム、またはこれらの合金等が例示される。酸化剤極108に用いる酸化剤極側触媒層112の触媒としては、燃料極側触媒層と同様のものを用いることができ、上記例示物質を使用することができる。なお、燃料極側触媒層106および酸化剤極側触媒層112の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもどちらでもよい。

##### 【0035】

燃料極102、酸化剤極108ともに、基体としては、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属等の多孔性基体を用いることができる。

**【0036】**

気化燃料容器1518は、気液分離膜1519を介して液体燃料容器1517に接続されている。また、気化燃料容器1518は気化燃料導入部1520に連通する。気化燃料1521は、気化燃料導入部1520から気液分離膜1519に供給され、気化燃料容器1518を経由して液体燃料容器1517に供給される。

**【0037】**

液体燃料容器1517および気化燃料容器1518の壁部の材料は、たとえば、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリ塩化ビニル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリスルホン、シリコンまたはこれらの共重合体または混合物等の樹脂とすることができる。

**【0038】**

気液分離膜1519は、液体である燃料124に対する表面張力と空気等の気体に対する表面張力とを異ならせ得る材料で構成することができる。または、多孔質体の表面をこのような材料で覆うことによって得られる部材を用いることもできる。気液分離膜1519には、たとえば撥液性の材料を用いることができる。たとえば、燃料124がメタノールまたはその水溶液である場合、メタノールの透過を抑制する膜とする。

**【0039】**

気液分離膜1519の材料として、具体的には、たとえば、ポリテトラフルオロエチレン（以下、PTFEとも呼ぶ。）、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）等のパーフルオロポリマー、ポリメタクリル酸1H、1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H、1H、2H、2H-パーフルオロデシル等のフルオロアルキルアクリレート、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化エチレンプロピレン等のフルオロオレフィンが挙げられる。また、ポリ塩化ビニリデン、ポリアセタール、ブタジエンとアクリルニトリルとの共重合体樹脂等を用いることもできる。

**【0040】**

このうち、PTFE等のパーフルオロポリマーは、気体の選択透過性および成膜特性のバランスに優れる点で好ましく用いられる。気液分離膜1519は、空気等の気体を効率よく透過させる必要があるため、膜厚を薄くすることが望まれる。膜の物性にもよるが、通常、5 $\mu$ m以下の薄膜に形成することが望まれる。PTFE等のパーフルオロポリマーを用いた場合、このような非多孔質の薄膜を安定的に形成することができる。

**【0041】**

また、ポリメタクリル酸1H、1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H、1H、2H、2H-パーフルオロデシル等のフルオロアルキルアクリレートポリマーは、成膜特性が良好で、薄膜を容易に形成でき、また、二酸化炭素の選択透過性を有するため、好ましく用いられる。フルオロアルキルアクリレートポリマーは、ポリカルボン酸の一部、または全部を、フルオロアルコールでエステル化することにより得られる。

**【0042】**

気液分離膜1519を構成するポリマーの分子量は、好ましくは1000~1,000,000、さらに好ましくは3000~100,000とする。分子量が大きすぎると溶液の調整が困難となり、制限透過層の薄層化が困難となることがある。分子量が小さすぎると十分な制限透過性が得られない場合がある。なお、ここでいう分子量とは数平均分子量をいい、GPC（Gel Permeation Chromatography）により測定することができる。

**【0043】**

また、ガス透過性の非多孔質膜を多孔質膜上に積層し、気液分離膜1519としてもよい。このとき、非多孔質膜には上述した膜を用いることができる。また、多孔質膜は、たとえば、ポリエーテルスルホンやアクリル共重合体などからなる膜である。具体的には、ゴアテックス（ジャパングアテックス（株）社製）（登録商標）、バーサポア（日本ポール社製）（登録商標）、スーポア（日本ポール（株）社製）（登録商標）などが例示される多孔質膜の膜厚は、たとえば50 $\mu$ m以上500 $\mu$ m以下とする。こうすることにより、気

液分離膜 1519 の機械的強度を向上させることができる。よって、機械的強度にすぐれた燃料電池 1516 を安定的に得ることができる。

#### 【0044】

このような積層膜は、たとえば、多孔質膜の表面に非多孔質膜の材料となる上述した樹脂の溶液をスピコート法により塗布し、乾燥することにより形成される。

#### 【0045】

また、気液分離膜 1519 として、ガス透過性の多孔質膜を用いてもよい。このとき、多孔質膜の材料として、非多孔質の気液分離膜 1519 に用いられる材料を用い、これを多孔質化してもよい。たとえば、多孔質 PTFE 膜等のパーフルオロポリマーの多孔質膜を用いることができる。この場合、気液分離膜 1519 の膜厚を、たとえば  $10\mu\text{m}$  以上  $500\mu\text{m}$  以下とすることができる。

#### 【0046】

燃料電池 1516 において、単セル構造 101 の燃料極 102 には、液体燃料容器 1517 から燃料 124 が供給される。燃料 124 は単セル構造 101 に供給される液体燃料を指し、燃料成分である有機溶媒を必須成分とする。また、燃料 124 は、燃料成分となる有機溶媒の水溶液とすることができる。また、液体燃料容器 1517 に収容される燃料 124 として、メタノール、エタノール、ジメチルエーテル、または他のアルコール類を用いることができる。また、シクロパラフィン等の液体炭化水素等、ホルマリン、ギ酸、あるいはヒドラジン等の液体燃料を用いることができる。また、液体燃料にはアルカリを加えることもできる。これにより、水素イオンのイオン伝導性を高めることができる。

#### 【0047】

また、気化燃料容器 1518 には、気化燃料導入部 1520 から気化燃料 1521 が補給される。気化燃料導入管 1520 は、たとえば、所定の位置に収容された気化燃料 1521 を気化燃料容器 1518 に導く管とすることができる。また、たとえば、気化燃料導入管 1520 は、気化燃料 1521 を収容する室であってもよい。気化燃料 1521 の補給は、たとえば、燃料成分を燃料 124 よりも高濃度で含む液体燃料または固形燃料を用い、この燃料成分を気化させる方法により行うことができる。このとき、高濃度液体燃料または固形燃料中の燃料成分を燃料を気化させる気化室が気化燃料導入部 1520 に連通している構成とすることができる。気化燃料 1521 の補給の具体的な方法については、第二の実施形態以降で詳細に説明する。

#### 【0048】

気化燃料容器 1518 中の気化燃料は、液体燃料容器 1517 に収容された燃料 124 の減少に伴い、気液分離膜 1519 を経由して液体燃料容器 1517 に移動する。たとえば、燃料成分がメタノール等の揮発性のアルコールである場合、気化したアルコールが液体燃料容器 1517 に収容された燃料 124 中に溶解し、拡散する。このような構成とすることにより、燃料電池 1516 の運転とともに減少する燃料成分を、気化燃料容器 1518 から必要な分だけ補給することが可能となる。このため、燃料を補給するためのポンプや燃料電池 1516 の出力を安定化するための補助電源等の補器を設ける必要がない。よって、燃料電池 1516 全体の構成を簡素化することができる。

#### 【0049】

また、燃料成分を一度気化して液体燃料容器 1517 に補給するため、気化燃料 1521 の原料として高濃度の液体燃料または固形燃料を用いることができる。このため、燃料電池 1516 全体を小型化することができる。

#### 【0050】

また、燃料極 102 には好適な濃度に希釈された液体の燃料 124 が供給されるため、燃料 124 がメタノール水溶液等である場合にも、クロスオーバーの発生を好適に抑制することができる。

#### 【0051】

このように、燃料電池 1516 は、気液分離膜 1519 を介して気化燃料 1521 と液体の燃料 124 とが接触する構成となっており、気化燃料 1521 が燃料 124 に補給さ

れる。よって、小型で簡素な構成でありながら、すぐれた出力を安定的に発揮することができる。

#### 【0052】

なお、単セル構造101の酸化剤極108には、酸化剤126が供給される。酸化剤126としては、通常、空気を用いることができるが、酸素ガスを供給してもよい。

#### 【0053】

なお、燃料電池1516においては、単セル構造101と気化燃料容器1518との間の隔壁全面を気液分離膜1519としたが、気化燃料容器1518と単セル構造101の隔壁の一部を気液分離膜1519としてもよい。

#### 【0054】

また、燃料電池1516においては、気化燃料導入部1520から気化燃料容器1518に気化燃料1521が供給される構成としたが、気化燃料導入部1520を設けない構成とすることもできる。この場合、第二の実施形態以降で説明するように、たとえば、気化燃料容器1518に気化燃料1521または気化燃料1521を生じさせる固形もしくは液体の燃料を配置しておくことができる。

#### 【0055】

##### (第二の実施形態)

本実施形態では、第一の実施形態に記載の単セル構造101を複数有する燃料電池の構成について説明する。ここでは、複数の単セル構造101が平面内にスタックされた構成を例に説明する。本実施形態に係る燃料電池は、携帯電話、ノート型等の携帯型パーソナルコンピュータ、PDA (Personal Digital Assistant)、各種カメラ、ナビゲーションシステム、ポータブル音楽再生プレーヤ等の小型電気機器に適用可能である。

#### 【0056】

図2は、本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す図である。図2の燃料電池は、複数の単セル構造101、燃料容器811、仕切板853、および回収管1525を含む。回収管1525は、単セル構造101の燃料極102を通過した液体および酸化剤極における電池反応で生成する水を回収し、燃料容器811に戻す経路となる。

#### 【0057】

図3は、図2のA-A'断面図である。図3の燃料電池においては、1枚の固体電解質膜114の一方の面に複数の燃料極102が設けられ、他方の面に複数の酸化剤極108が設けられており、複数の単セル構造101が固体電解質膜114を共有し、同一の平面内に配置された構成となっている。また、燃料容器811が燃料極102の外側を覆い囲うように設けられており、燃料容器811中に収容された燃料124が燃料極102に直接供給される。

#### 【0058】

図2および図3中に示した燃料容器811は、図1における液体燃料容器1517に対応し、燃料極102に供給される燃料124が収容されている。また、図3において、燃料容器811の底部に気化燃料容器1518が設けられており、気化燃料容器1518と燃料容器811の間の一部が気液分離膜1519となっている。また、燃料容器811の側方に、シャッター1524を介して気化燃料容器1518に連通する高濃度燃料容器1522が設けられている。

#### 【0059】

燃料容器811に収容された燃料124は、燃料容器811内に設けられた複数の仕切板853に沿って流れ、複数の単セル構造101に順次供給される。単セル構造101に供給された燃料124のうち、電池反応に用いられなかったものは、回収管1525から燃料容器811に戻される。上記式(1)および式(2)に示したように、燃料電池の使用に伴い、燃料124中の水の割合が増加するため、燃料124中の燃料成分の濃度が減少する。

#### 【0060】

すると、高濃度燃料容器 1522 と燃料容器 811 との間に設けられた気液分離膜 1519 を経由して、燃料容器 811 中に気化燃料 1521 が補充される。ここで、高濃度燃料容器 1522 に収容された高濃度燃料 1523 は気化し、シャッター 1524 を通過した後、気液分離膜 1519 を経由して燃料容器 811 に収容された燃料 124 に溶解する。このため、単セル構造 101 の燃料極 102 には、所定の濃度の燃料 124 を安定的に供給することができる。

#### 【0061】

シャッター 1524 は、気化燃料容器 1518 と高濃度燃料容器 1522 との間を隔て、開閉可能な構成となっている。シャッター 1524 の開閉により、気化燃料容器 1518 内の燃料蒸気の濃度を調節することができる。シャッター 1524 が開くと、高濃度燃料容器 1522 の側から気化燃料 1521 が気化燃料容器 1518 に移動できる。シャッター 1524 は、たとえば以下の構成とすることができる。

#### 【0062】

図 20 (a) および図 20 (b) は、図 3 の燃料電池のシャッター 1524 の近傍を示す図である。図 20 (a) は、シャッター 1524 が閉じた状態を示し、図 20 (b) は、シャッター 1524 が開いた状態を示す。シャッター 1524 は、可動板 1547 と回転部 743 からなる。シャッター 1524 の開閉は、可動板 1547 と掛合している回転部 743 が回転することにより可動板 1547 が摺動してなされる。

#### 【0063】

図 21 (a) および図 21 (b) は、シャッター 1524 の別の構成を示す図である。図 21 (a) および図 21 (b) も、図 3 の燃料電池のシャッター 1524 の近傍を示す図である。図 21 (a) は、シャッター 1524 が閉じた状態を示し、図 21 (b) は、シャッター 1524 が開いた状態を示す。

#### 【0064】

図 21 (a) および図 21 (b) では、シャッター 1524 を構成する可動板 1547 が、回転部 743 を軸として回転することにより、高濃度燃料容器 1522 と気化燃料容器 1518 との間の開閉が行われる。

#### 【0065】

また、図 22 (a) および図 22 (b) は、シャッター 1524 の別の構成を示す図である。図 22 (a) および図 22 (b) も、図 3 の燃料電池のシャッター 1524 の近傍を示す図である。図 22 (a) は、シャッター 1524 が閉じた状態を示し、図 22 (b) は、シャッター 1524 が開いた状態を示す。

#### 【0066】

図 22 (a) および図 22 (b) では、シャッター 1524 を構成する可動板 1547 を支持する支持部 1548 が、回転部 743 と掛合している。そして、回転部 743 が回転することにより、支持部 1548 が摺動するため、これに固定された可動板 1547 が気化燃料容器 1518 の一端を開閉する。

#### 【0067】

シャッター 1524 を設けることにより、燃料電池を使用していない時には気化燃料 1521 の供給を停止することができる。なお、シャッター 1524 は、開または閉の 2 段階に切り替える構成であってもよいし、気化燃料容器 1518 の端面の被覆率を所定の段階で調節するように構成されていてもよい。気化燃料容器 1518 と高濃度燃料容器 1522 の界面の被覆率を調節可能な構成とすることにより、シャッター 1524 を用いて気化燃料 1521 の供給をさらに精密に調節することができる。また、図 2 および図 3 には示していないが、シャッター 1524 の開閉を制御する制御部を燃料電池に設けることもできる。こうすれば、シャッター 1524 の開閉をさらに確実に調節することができる。

#### 【0068】

本実施形態の燃料電池では、高濃度燃料 1523 を気化して燃料容器 811 に補給するため、燃料容器 811 中の燃料が消費された際に、必要な量の燃料成分が気化燃料 1521 として補給される。たとえば、燃料成分がメタノール等の揮発性にすぐれた物質であれ

ば、高濃度燃料 1523 は室温中でも自然気化し、容易に燃料容器 811 中の液体の燃料 124 に溶解し、拡散する。このため、ポンプ等の燃料補給用の補器を用いることなく、簡素な構成で安定的な燃料の補給が可能となる。このとき、気液分離膜 1519 およびシャッター 1524 が設けられているため、気化燃料 1521 を燃料容器 811 の側に所定のタイミングで選択的に移動させることができる。また、燃料極 102 には燃料容器 811 から液体の燃料 124 が供給されるため、燃料極 102 に供給する燃料 124 を所定の濃度に安定的に調節することができる。また、高濃度燃料容器 1522 中の高濃度燃料 1523 が収容されるため、高濃度燃料容器 1522 の小型化が可能である。

#### 【0069】

なお、本実施形態において、気液分離膜 1519 およびシャッター 1524 の配置は上述したものに限らず、種々の構成を採用することができる。以下、配置の異なる燃料電池の構成を例示する。

#### 【0070】

たとえば、図 4 は、本実施形態に係る燃料電池の別の構成を示す断面図である。図 4 では、単セル構造 101 の上部を覆うように燃料容器 811 が設けられている。また、高濃度燃料容器 1522 の上部にシャッター 1524 が設けられている。このような構成とすれば、高濃度燃料容器 1522 中で自然気化した気化燃料 1521 の気化燃料容器 1518 までの移動経路を図 3 の構成よりも短縮することができる。このため、燃料電池の構成をさらに小型化、簡素化することができる。

#### 【0071】

また、図 5 は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図 5 の燃料電池の基本構成は図 4 の燃料電池と同様であるが、気液分離膜 1519 を燃料容器 811 の側面に設けた点異なる。この構成においても、燃料容器 811 に気化燃料 1521 を安定的に供給することができる。

#### 【0072】

また、図 6 は、本実施形態に係る燃料電池のさらにまた別の構成を示す断面図である。図 6 の燃料電池も基本構成は図 4 の燃料電池と同様であるが、気液分離膜 1519 とシャッター 1524 とが互いに隣接して設けられた点異なる。気液分離膜 1519 が燃料容器 811 側に設けられ、シャッター 1524 が高濃度燃料容器 1522 の側に設けられる。この構成では、シャッター 1524 を閉じた際に気液分離膜 1519 がシャッター 1524 により被覆されるため、燃料容器 811 に収容された燃料 124 への気化燃料 1521 の供給をさらに精密に調節することができる。

#### 【0073】

また、以上の例において、気液分離膜 1519 を、たとえば、燃料容器 811 中の燃料 124 の濃度に応じて開口率が変化する材料で構成してもよい。こうすれば、気液分離膜 1519 自体に気化燃料 1521 の補給を調節する機能を付与することができる。

#### 【0074】

以上の構成の燃料電池において、高濃度燃料 1523 は、燃料成分を高濃度で含む液体燃料または固形燃料とすることができる。高濃度燃料 1523 を固形化燃料とすることにより、高濃度燃料 1523 の漏出を抑制することができる。このため、燃料電池をさらに安全に使用することができる。また、高濃度燃料 1523 を液体とする場合にも、気化燃料 1521 として燃料容器 811 に補給するため、高濃度燃料 1523 の液体の漏出を抑制することができる。

#### 【0075】

高濃度燃料 1523 を、高濃度の液体燃料とする場合、たとえば、燃料成分の濃度が 60 体積%～100 体積%程度の燃料成分の水溶液または原液とすることができる。60 体積%以上の有機液体燃料またはその水溶液とすることにより、燃料電池の燃料供給系に供給する燃料 124 よりも高濃度の液体燃料を容器内に収容しておくことができる。このため、小型で長期間の燃料補給が可能な燃料容器を安定的に得ることができる。

#### 【0076】



また、高濃度燃料 1523 を液体燃料とする場合、燃料電池を次の構成としてもよい。図 23 は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図 23 に示した燃料電池の基本構成は図 4 に示した燃料電池と同様であるが、気化燃料容器 1518 と高濃度燃料容器 1522 とを隔てる側面にシャッター 1524 が設けられている点と、高濃度燃料容器 1522 内に気液分離膜 1519 が設けられ、高濃度燃料容器 1522 が気液分離膜 1519 により二室に仕切られている点が異なる。

#### 【0077】

高濃度燃料容器 1522 に気液分離膜 1519 を設けて二室に仕切ることにより、高濃度燃料容器 1522 の一方の室を高濃度燃料収容室とし、液体燃料である高濃度燃料 1523 を高濃度燃料収容室内に確実に存在させて、高濃度燃料容器 1522 の外部に漏出するのを抑制することができる。また、他方の室を高濃度燃料 1523 の気化室とすることができる。ここで、気化室は、気化燃料容器 1518 に当接する側の室であり、シャッター 1524 は気化室と気化燃料容器 1518 との間に設けられている。このような構成とすることにより、高濃度燃料収容室に収容された液体燃料から気化した気化燃料 1521 を選択的に気液分離膜 1519 から気化室に存在させておくことができる。そして、シャッター 1524 の開閉を調節し、気化燃料 1521 の気化燃料容器 1518 への供給量を調節することができる。また、燃料電池本体 100 に気化燃料 1521 をさらに選択的に補給することができる。このような気液分離膜 1519 として、たとえば、第一の実施形態にて例示したガス透過性の非多孔質膜等を用いることができる。

#### 【0078】

なお、高濃度の液体燃料は、液体燃料を吸収させる多孔質材料であるウィッキング材に含浸させておくこともできる。ウィッキング材は、たとえば発泡体などの多孔質材料で構成することができる。ウィッキング材の材料として、具体的には、たとえば、ポリウレタン、メラミン、ナイロンなどのポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル、セルロース、またはポリアクリロニトリルなどの樹脂を用いることができる。

#### 【0079】

また、高濃度燃料 1523 を固形燃料とする場合、たとえば、燃料成分の液体をゲル化して用いることができる。ゲル化燃料に用いるゲル化剤としては、燃料電池の使用温度で安定な種々の材料を燃料成分の種類に応じて適宜選択して用いることができる。たとえば、燃料成分がメタノール等のアルコールである場合、ゲル化材として、たとえば、ポリアクリルアミド、ポリエチレンオキサイド、ポリアクリル酸塩、ポリビニルアルコール等の高分子材料の架橋物を用いることができる。これらの材料は、単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また、たとえば、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース等のセルロース誘導体、カルボキシビニルポリマー（カルボマー）等のいわゆる半合成高分子材料の架橋物を用いてもよい。

#### 【0080】

また、高分子のゲル化剤を用いずに固形燃料を得ることもできる。たとえば、燃料成分がアルコールである場合、ステアリン酸ナトリウム等の脂肪酸と、水酸化ナトリウム等の水酸化物とを混合し、けん化反応によりゲル状のステアリン酸ナトリウムを得ることにより固形燃料とすることができる。また、水酸化ナトリウムに変えて、ホウ砂  $\text{Na}_2[\text{B}_4\text{O}_5(\text{OH})_4] \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  などの水中でアルカリ性を示す化合物を用いてもよい。

#### 【0081】

図 2～図 6 に示した燃料電池では、高濃度燃料 1523 を液体としても固形としてもよい。また、高濃度燃料 1523 を高濃度液体燃料とする場合、燃料電池を以下の構成とすることもできる。図 7 は、本実施形態に係る燃料電池の別の構成を示す断面図である。図 7 に示した燃料電池の基本構成は図 3 に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器 1522 において高濃度燃料 1523 の滴下速度または滴下量を調節して気化燃料 1521 の補給を制御する点が異なる。

**【0082】**

図7において、高濃度燃料容器1522は滴下部1526を有し、滴下部1526から高濃度燃料1523が滴下される位置に燃料吸収部1527が設けられている。燃料吸収部1527は、たとえば、高濃度燃料1523を吸収する多孔質体とすることができる。多孔質体の材料は、燃料成分に対する耐性を有する材料であればよく、たとえば、SUS、Ti、Ni、Al等の金属；シリカ、アルミナ、ジルコニア等の金属酸化物；炭化ケイ素、炭化チタン、ゼオライト等のセラミックス；またはセルロース、ポリウレタン等の高分子材料；とすることができる。なお、高分子材料としては、他に、前述のウィッキング材として利用される材料が挙げられる。

**【0083】**

図7の燃料電池においては、滴下部1526から滴下した高濃度燃料1523を燃料吸収部1527に吸収させた後、燃料吸収部1527に吸収させた燃料が気化して気化燃料容器1518に補給される構成となっている。このため、シャッター1524を設けて開閉させなくても、滴下部1526からの滴下量または滴下速度を調節することにより、気化燃料1521の補給を調節することができる。

**【0084】**

また、高濃度燃料1523を固形燃料とする場合、燃料電池を次の構成としてもよい。図8は、本実施形態に係る燃料電池のまた別の構成を示す断面図である。図8に示した燃料電池の基本構成は図4に示した燃料電池と同様であるが、気化燃料容器1518と高濃度燃料容器1522とを隔てる側面にシャッター1524が設けられている点と、高濃度燃料容器1522内に隔壁1549が設けられた点が異なる。

**【0085】**

隔壁1549は、高濃度燃料容器1522を燃料収容室と気化室とに隔てる部材であり、ガス透過性を有する材料により構成される。隔壁1549の材料として、具体的には、図7に示した燃料電池において燃料吸収部1527として利用可能な材料を用いることができる。高濃度燃料容器1522内に隔壁1549を設けることにより、固形燃料である高濃度燃料1523を高濃度燃料容器1522の所定の領域に保持して容器外に漏出するのを抑制しつつ、これを気化して燃料容器811の側に確実に供給することができる。また、高濃度燃料1523を固形燃料とすることにより、高濃度燃料容器1522の配置方向によらず、高濃度燃料1523を気化して燃料容器811に安定的に供給することが可能となる。また、高濃度燃料1523の漏出を抑制することができる。このため、携帯型の電気機器により一層好適に用いることができる。

**【0086】**

なお、以上の構成において、シャッター1524にかえて小型のポンプを用いてもよい。図9は、ポンプを有する燃料電池の構成を示す断面図である。図9の燃料電池の基本構成は図3に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器1522中の高濃度燃料を気化し、気化燃料1521をポンプ1117を用いて気化燃料導入管1528から気化燃料容器1518に供給する点が異なる。

**【0087】**

ポンプ1117としては、たとえば消費電力が非常に小さい小型の圧電モーター等の圧電素子を用いることができる。また、図9では図示していないが、燃料電池にポンプ1117の動作を制御する制御部を設けることができる。この構成によれば、ポンプ1117の排気速度を調節することにより、気化燃料1521の供給量を調節することができるため、気化燃料1521の供給を確実に制御することができる。

**【0088】**

また、以上の構成において、高濃度燃料1523が高濃度の液体燃料である場合や、ゲル化燃料であってもある程度の流動性を有している場合、高濃度燃料容器1522を高濃度燃料1523の補充が可能な構成としてもよい。ここでは、図4に示した燃料電池の場合



合を例に、説明する。

#### 【0089】

図10は、本実施形態に係る燃料電池の構成を示す断面図である。図10の燃料電池の基本的な構成は図4に示した燃料電池と同様であるが、高濃度燃料容器1522に、高濃度燃料1523の収容室に連通する開閉可能な高濃度燃料補充部1529が設けられた点異なる。なお、図10では、高濃度燃料補充部1529が高濃度燃料容器1522の上部の壁部に設けられているが、高濃度燃料補充部1529は高濃度燃料容器1522の側壁に設けることもできる。

#### 【0090】

高濃度燃料補充部1529を設けることにより、燃料電池の使用に伴い高濃度燃料1523が消費された場合にも、高濃度燃料補充部1529から高濃度燃料1523を注入し、補充することができる。このため、燃料電池をさらに長期間安定的に運転させることができる。

#### 【0091】

高濃度燃料補充部1529の構成は、高濃度燃料1523の補充時に開となり、それ以外の燃料電池の使用時には確実に閉となる構成であれば種々の態様を採用することができる。たとえば、高濃度燃料補充部1529は、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、開口を閉止する閉止部材から構成されてもよい。このとき、閉止部材を壁部にネジ止め等により装着し、高濃度燃料1523の漏出を防止する構成としてもよい。また、たとえば、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、開口を被覆するキャップとを有する構成としてもよい。また、たとえば、高濃度燃料容器1522の壁部を貫通する開口と、壁部に沿ってスライドすることにより開口を開閉するスライド板とを有する構成としてもよい。

#### 【0092】

また、高濃度燃料1523が固形燃料である場合、高濃度燃料容器1522に開閉可能な蓋部を設けることにより、固形燃料の補充が可能となる。図11(a)および図11(b)は、蓋部の設けられた高濃度燃料容器1522を有する燃料電池の構成を示す図である。図11(a)および図11(b)に示した燃料電池の基本構成は図4と同様であるが、高濃度燃料容器1522の側壁に開閉可能な蓋部1530が設けられている。気化燃料容器1518の上部壁面を構成する筐体と、高濃度燃料容器1522の側部壁面を構成する蓋部1530とは、ピン部1234を有するちょうつがいにより接続されている。また、図11(a)および図11(b)には示していないが、高濃度燃料容器1522は、蓋部1530を閉じた状態で固定する固定部材を有する。

#### 【0093】

図11(a)および図11(b)に示した燃料電池において、ピン部1234を回転中心として蓋部1530を回転させることにより、高濃度燃料容器1522の側面が開く。高濃度燃料容器1522に高濃度燃料1523を補充する際には、蓋部1530を開き、高濃度燃料容器1522の底部に設けられたスライド板1531を高濃度燃料容器1522の外側に向かって摺動させ、引き出す。図11(a)には、蓋部1530を開き、スライド板1531を引き出した状態が示されている。そして、新しい固形燃料をスライド板1531の上に設置し、スライド板1531を高濃度燃料容器1522の内部に向かって摺動させることにより、高濃度燃料1523が高濃度燃料容器1522の内部に収容される。そして、蓋部1530を閉じればよい(図11(b))。

#### 【0094】

なお、図11では、ピン部1234を回転中心として蓋1235を回転して閉じることによって高濃度燃料容器1522を開閉する構成としたが、開閉方法としてはこれに限定されるものではなく他にもツメ等を引っ掛けて合致させる方式やスライドロック方式等で装着することができる。

#### 【0095】

また、以上の燃料電池では、気液分離膜1519が気化燃料容器1518に設けられた

構成を示したが、本実施形態の燃料電池において、気液分離膜 1519 が高濃度燃料容器 1522 に設けられていてもよい。たとえば、図 6 に示した燃料電池において、気液分離膜 1519 およびシャッター 1524 を高濃度燃料容器 1522 に設けてもよい。この場合、シャッター 1524 を開くことにより、気液分離膜 1519 を経由して高濃度燃料容器 1522 中の気化燃料 1521 を気化燃料容器 1518 に移動させることができる。

#### 【0096】

また、図 3 の燃料電池においては、複数の単セル構造 101 が 1 枚の固体電解質膜 114 を共有する構成としたが、それぞれの単セル構造 101 が独立に固体電解質膜 114 を有し、複数の単セル構造 101 が平面内に集積された構成としてもよい。こうすることにより、隣接する単セル構造 101 の電位が異なる場合に、固体電解質 114 の面方向にプロトンが移動することの抑制が図られる。

#### 【0097】

##### (第三の実施形態)

以上の実施形態に記載の燃料電池において、高濃度燃料 1523 を収容する高濃度燃料容器 1522 が燃料カートリッジであってもよい。燃料カートリッジは、燃料電池本体から着脱可能であり、交換および携帯が可能である。

#### 【0098】

図 12 (a) および図 12 (b) は、燃料カートリッジおよび燃料カートリッジが収容される高濃度燃料容器 1522 の構成を模式的に示す断面図である。この燃料電池は、燃料電池本体 100 および高濃度燃料カートリッジ 1532 からなる。図 11 に示した燃料電池と同様に、燃料電池本体 100 の側壁に開閉可能な蓋部 1530 が設けられており、高濃度燃料カートリッジ 1532 の挿入が可能に構成されている。

#### 【0099】

図 12 (a) に示したように、高濃度燃料カートリッジ 1532 は、高濃度燃料 1523 を収容する収容室と、バネ部 1533 と、スライド板 1534 とを有する。スライド板 1534 に側方から力が加わると、バネ部 1533 が収縮する。また、高濃度燃料容器 1522 は、高濃度燃料カートリッジ 1532 のスライド板 1534 を固定するストッパー 1535 を有する。

#### 【0100】

高濃度燃料カートリッジ 1532 の交換は、蓋部 1530 を開き、高濃度燃料カートリッジ 1532 を高濃度燃料容器 1522 の側方から挿入することにより行う。このとき、高濃度燃料カートリッジ 1532 を高濃度燃料容器 1522 内に収容すると、スライド板 1534 がストッパー 1535 に当接した位置からバネ部 1533 が伸縮するため、高濃度燃料カートリッジ 1532 を完全に収容して蓋部 1530 を閉じて固定部材（不図示）で固定すれば、高濃度燃料カートリッジ 1532 が高濃度燃料容器 1522 内に固定される（図 12 (b)）。

#### 【0101】

図 12 (a) および図 12 (b) に示した燃料電池では、バネ部 1533 を設けることにより、高濃度燃料カートリッジ 1532 を燃料電池本体 100 の内部に確実に固定し、安定に保持することができる。よって、携帯型の電気機器等に好適に用いることができる。また、簡素な構成で高濃度燃料カートリッジ 1532 の交換を容易に行うことができる。このため、高濃度燃料 1523 の補充が容易であり、燃料電池を長期間安定的に運転することができる。

#### 【0102】

なお、図 12 (a) および図 12 (b) に示した燃料電池において、気液分離膜 1519 が高濃度燃料カートリッジ 1532 に設けられていてもよい。たとえば、燃料電池本体 100 に高濃度燃料カートリッジ 1532 を挿入した際に、シャッター 1524 に対向するように気液分離膜 1519 を設けることができる。こうすれば、高濃度燃料カートリッジ 1532 から気化燃料容器 1518 にさらに確実に気化燃料 1521 を移動させることができる。

**【0103】**

また、高濃度燃料カートリッジ1532の構成および高濃度燃料容器1522への装着方法は、上述の構成に限られず、種々の構成を採用することができる。たとえば、図13(a)および図13(b)は、高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料容器1522の別の構成を示す断面図である。

**【0104】**

図13(a)においては、高濃度燃料カートリッジ1532は固形の高濃度燃料1523が収容される収容室と、高濃度燃料カートリッジ1532内で収容室を外部と区画する燃料吸収部1527とを有する。また、高濃度燃料カートリッジ1532には、本体接続部1536が設けられている。本体接続部1536は壁部の一部に凹状に形成されており、高濃度燃料容器1522に凸状に形成されたカートリッジ接続部1539に嵌合する形状となっている。また、高濃度燃料容器1522には、高濃度燃料カートリッジ1532を固定する押さえ板1538と、押さえ板1538の位置を可動にするための伸縮可能なバネ部1537が設けられている。

**【0105】**

高濃度燃料カートリッジ1532を高濃度燃料容器1522に装着する際には、バネ部1537を収縮させて高濃度燃料容器1522内に高濃度燃料カートリッジ1532を挿入するのに十分な空間を形成しておき、高濃度燃料カートリッジ1532を装着する。このとき、本体接続部1536とカートリッジ接続部1539を嵌合させて、押さえ板1538を高濃度燃料カートリッジ1532の壁面に当接させることにより、高濃度燃料カートリッジ1532が高濃度燃料容器1522内に固定される(図13(b))。

**【0106】**

本体接続部1536の凹部およびカートリッジ接続部1539の凸部は開口しているため、高濃度燃料カートリッジ1532を接続することにより、高濃度燃料容器の内部で気化した高濃度燃料1523が燃料電池本体100に移動可能となる。なお、高濃度燃料カートリッジ1532の使用前には、本体接続部1536の開口をたとえばシール部材でシールしておき、使用時にこれを剥離して用いることができる。

**【0107】**

また、図14(a)および図14(b)は、高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料カートリッジ1532を装着可能に構成された高濃度燃料容器1522のまた別の構成を示す図である。図14(a)は高濃度燃料カートリッジ1532および高濃度燃料容器1522の断面図である。また、図14(b)は、これらの上面図である。図14(a)および図14(b)に示した燃料電池の基本的な構成は、図13(a)および図13(b)に示した燃料電池と同様であるが、押さえ板1538とバネ部1537で高濃度燃料カートリッジ1532を固定する方法にかえて、フック1542とストッパー1540により固定する構成となっている。

**【0108】**

図14(a)に示したように、高濃度燃料カートリッジ1532には、フック1542を固定するストッパー1540が設けられており、高濃度燃料容器1522のカートリッジ接続部1539にはフック1542が設けられている。このため、カートリッジ接続部1539を本体接続部1536に嵌合させて、フック1542をストッパー1540に掛合することにより、高濃度燃料容器1522内に高濃度燃料カートリッジ1532が固定される(図14(b))。

**【0109】**

なお、図14(a)および図14(b)では、高濃度燃料1523において、本体接続部1536の周囲にシール材1541が貼付されている。シール材1541は、弾性部材であり、たとえば、ガス透過性が低く柔軟性がある高分子材料を用いることができる。このような材料として、たとえば、エチレンプロピレンゴム、シリコンゴム等のエラストマーを用いることができる。シール材1541をエチレンプロピレンゴムとする場合、エチレンとプロピレンの共重合体(EPM)またはエチレンとプロピレンと第3成分の共重

合体 (EPDM) を用いることができる。

#### 【0110】

また、図13および図14に示した燃料電池において、高濃度燃料カートリッジ1532に設けられた燃料吸収部1527に、気液分離特性に優れた材料を用いることにより、これを気液分離膜1519として好適に用いることができる。このため、気化燃料容器1518に気化燃料をより一層確実に移動させることができる。

#### 【0111】

また、図13および図14に示した燃料電池の高濃度燃料カートリッジ1532において、燃料吸収部1527に代えて気液分離膜1519を設けてもよい。こうすれば、高濃度燃料容器1522がカートリッジ式である場合にも、これを高濃度燃料カートリッジ1532の所定の領域に確実に保持しておくことができる。また、高濃度燃料1523の気化した気化燃料1521が気液分離膜1519を選択的に通過して燃料電池本体100に移動する構成とすることができる。このため、図23に示した燃料電池と同様に、高濃度燃料1523が液体である場合にも、その漏出を抑制することができる。このような気液分離膜1519として、たとえば、第一の実施形態にて例示したガス透過性の非多孔質膜等を用いることができる。

#### 【0112】

このように、本実施形態の構成では、燃料成分を高濃度で含有する高濃度燃料容器1522を携帯可能なカートリッジ方式とすることができる。このため、燃料電池全体を小型化しつつ、すぐれた出力を長期間安定的に発揮させることができる。また、高濃度燃料1523を固形燃料とすることにより、カートリッジ方式にした際にも携帯時の漏出等を抑制し、使用時の安全性をより一層向上させることができる。

#### 【0113】

以上、本発明を実施の形態に基づいて説明した。これらの実施の形態は例示であり、それらの各構成要素や各処理プロセスの組み合わせにいろいろな変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

#### 【0114】

たとえば、以上の実施形態では、気化燃料1521が液体燃料容器1517や燃料容器811の壁部の一部をなす気液分離膜1519を介して燃料124中に移動する構成を例に説明したが、気化燃料1521の供給部は、液体燃料の供給系のいずれに設けることもできる。たとえば、液体燃料の供給系として液体燃料供給管を有する場合、液体燃料供給管の壁の一部に気液分離膜1519を設け、液体燃料供給管が気液分離膜1519を介して気化燃料導入部1520または気化燃料容器1518に連通する構成とすることもできる。

#### 【0115】

また、以上の実施形態では、高濃度燃料容器1522に収容された高濃度燃料1523が自然気化する態様を中心に説明したが、燃料電池が高濃度燃料1523の気化量を調節する調節部材を備える構成としてもよい。気化量の調節は、たとえば高濃度燃料容器1522の温度を調節したり、高濃度燃料容器1522に振動を与えたりすることにより行うことができる。

#### 【0116】

また、以上の実施形態において、燃料極102への液体の燃料124の供給に小型のポンプ1117を用いてもよい。ポンプ1117として、たとえば図9に示した燃料電池において使用可能なものを用いることができる。

#### 【実施例】

##### 【0117】

(メタノールガスのメタノール水溶液への拡散速度の測定)

本実施例では、まず、気体のメタノールがメタノール水溶液に拡散する際の速度の測定を行った。図15は、測定に用いた容器を示す断面図である。図15において、測定容器1543内に、第一の容器1544、多孔質PTFE膜1546、および第二の容器15

45を下からこの順に積層した。第一の容器1544と第二の容器1545とは、多孔質PTFE膜1546を介して連通しており、第一の容器1544中の気体が選択的に第二の容器1545の側に移動可能に構成されている。

#### 【0118】

第一の容器1544中に純メタノールを収容し、第二の容器1545中に12mlの純水を収容した。第一の容器1544中のメタノールが気化してメタノールガスとなり、多孔質PTFE膜1546を経由して第二の容器1545の側に移動する。すると、第二の容器1545に収容された純水にメタノールガスが溶解するため、メタノール濃度が増加する。

#### 【0119】

測定容器1543を用いて第二の容器1545中の液体のメタノール濃度の経時変化を測定した。なお、測定開始時の第二の容器1545中の液体のメタノール濃度は0体積%である。また、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度は、ガスクロマトグラフィーにより測定した。また、多孔質PTFE膜1546がメタノールガスに接触する面積は、 $10\text{ cm}^2$ とした。

#### 【0120】

図16は、経過時間と第二の容器1545中のメタノール濃度の関係を示す図である。また、図17は、図16の結果より、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度と拡散速度の関係を示す図である。ここで、上記実施形態で説明した燃料電池の単セル構造101について計算すると、たとえば $60\text{ mA/cm}^2$ の電流密度で電流を供給するために、 $0.016\text{ ml/h/cm}^2$ の純メタノールが必要となる。図17より、本実施例の方法を用いれば、上記の運転条件に十分なメタノール補給量が得られることがわかる。このため、高濃度メタノールをガス化して燃料124に供給する方式とすることにより、燃料電池を長期間安定的に運転させることができる。

#### 【0121】

また、図16および図17に示したように、第二の容器1545中のメタノール濃度が増加するにつれて拡散速度は減少した。そして、第二の容器1545中のメタノール濃度が増加すると高濃度メタノールの拡散が停止し、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度が一定となる。このことから、多孔質PTFE膜1546を用いることにより、第二の容器1545中の液体のメタノール濃度を一定に保つことができる。このため、この方式を燃料電池の燃料供給系に適用することにより、ポンプ等の補器を用いることなく、燃料極102に所定の濃度の液体燃料を安定的に供給することができる。

#### 【0122】

(燃料電池への適用)

そこで、上述の構成を燃料電池に適用して発電特性の評価を行った。図18は、本実施形態で用いた燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。図18に示した燃料電池は、図1に示した燃料電池1516の構成と基本的には同様である。図18における気化燃料容器1518に連通する高濃度燃料容器1522は、図1における気化燃料導入部1520に対応する。この構成では、高濃度燃料容器1522に配置された高濃度燃料1523が気化し、気化燃料として高濃度燃料容器1522から気化燃料容器1518、気液分離膜1519の順に移動し、液体燃料容器1517に収容された燃料124に溶解する。なお、図18には示していないが、燃料124を循環させる循環経路を設けた。

#### 【0123】

図18の燃料電池について、室温中で1Aの定電流で放電させた際の電圧の経時変化を測定した。気液分離膜1519として、PTFEの多孔質膜を用いた。また、燃料124を循環させて運転した。

#### 【0124】

燃料124として5体積%のメタノール水溶液を用いた。また、高濃度燃料1523として、純メタノールまたはゲル化剤を用いてゲル化した固形(ゲル)化メタノール燃料を用いた。表1は、実施例および比較例で用いた燃料を示す図である。表1において、「燃

料」は、図 18 における燃料 124 に対応し、「高濃度燃料」は、図 18 における高濃度燃料 1523 に対応する。

【0125】

【表 1】

表 1

	燃料	高濃度燃料	気化燃料接触面積 (cm <sup>2</sup> )
実施例 1	5体積% MeOH aq. 23ml	MeOH 5ml	5
実施例 2	5体積% MeOH aq. 23ml	固形燃料 5g (MeOH 6ml相当)	10
比較例	5体積% MeOH aq. 28ml	—	5

【0126】

図 19 は、発電時間と電圧の関係を示す図である。図 19 より、高濃度燃料 1523 として純メタノールおよび固形メタノール燃料のいずれを用いた場合についても、10 時間以上安定な出力が発揮されることが確認された。一方、比較例においては、使用したメタノール量自体は実施例と同等であるのが、高濃度燃料 1523 からのメタノールの補給を行わなかったため、発電後の電圧降下が著しかった。

【0127】

以上の結果より、高濃度燃料 1523 を用いてこれをいったん気化した後燃料 124 に溶解させて供給することにより、燃料電池を長期間安定的に運転可能であることが明らかになった。

【図面の簡単な説明】

【0128】

- 【図 1】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 2】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す上面図である。
- 【図 3】 図 2 を A-A' 方向から見た図である。
- 【図 4】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 5】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 6】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 7】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 8】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 9】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 10】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 11】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 12】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 13】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 14】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 15】 実施例に係るメタノールガスの拡散速度の測定方法を説明する図である。
- 【図 16】 実施例に係る燃料容器の放置時間と燃料濃度の関係を示す図である。
- 【図 17】 実施例に係る燃料容器中の燃料濃度と拡散速度の関係を示す図である。
- 【図 18】 実施例に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。
- 【図 19】 実施例に係る燃料電池の発電時間と電圧の関係を示す図である。
- 【図 20】 本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。
- 【図 21】 本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。
- 【図 22】 本実施形態に係る燃料電池のシャッターの構成を示す図である。
- 【図 23】 本実施形態に係る燃料電池の構成を模式的に示す断面図である。

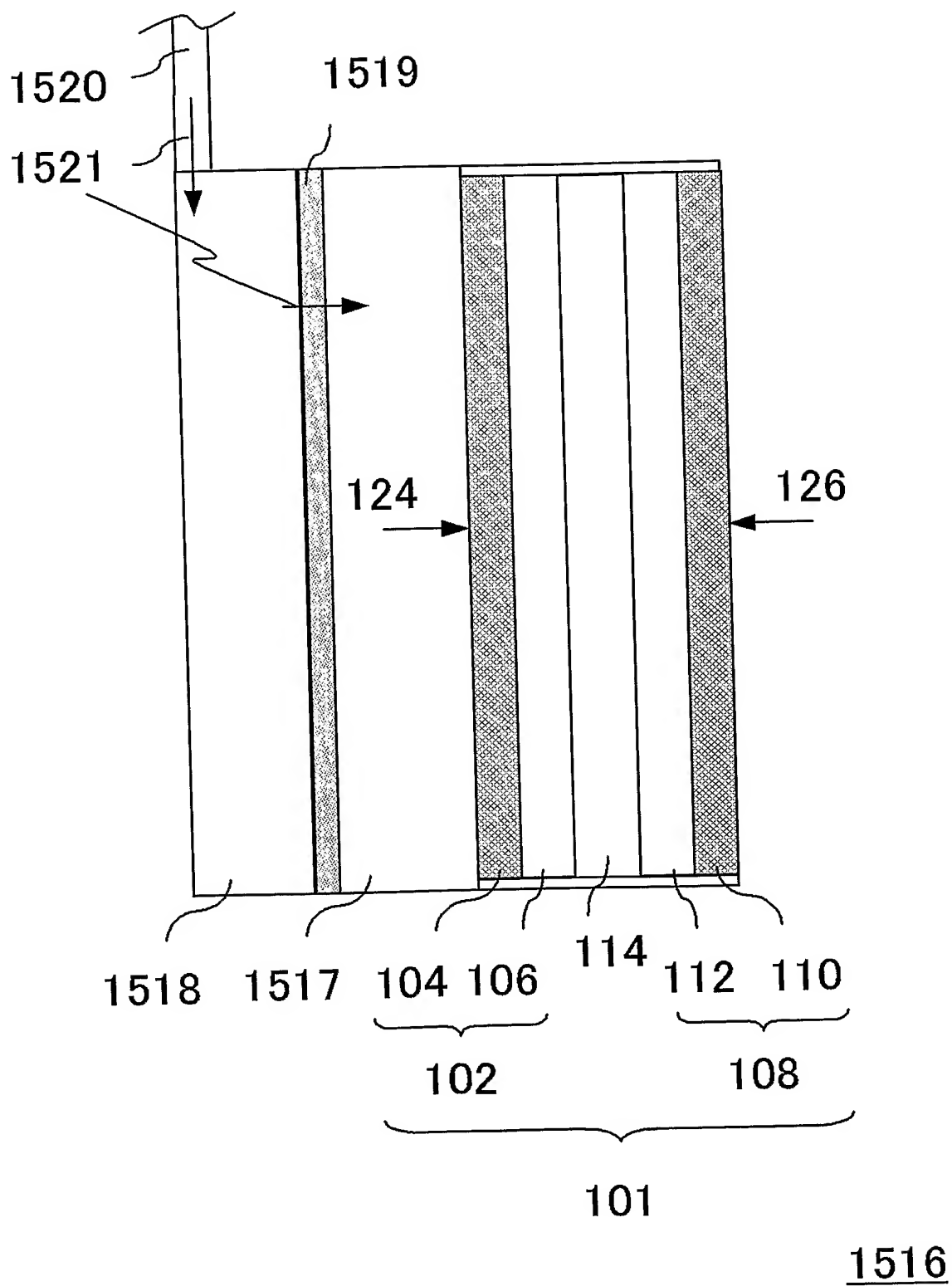
【符号の説明】

【0129】

100 燃料電池本体

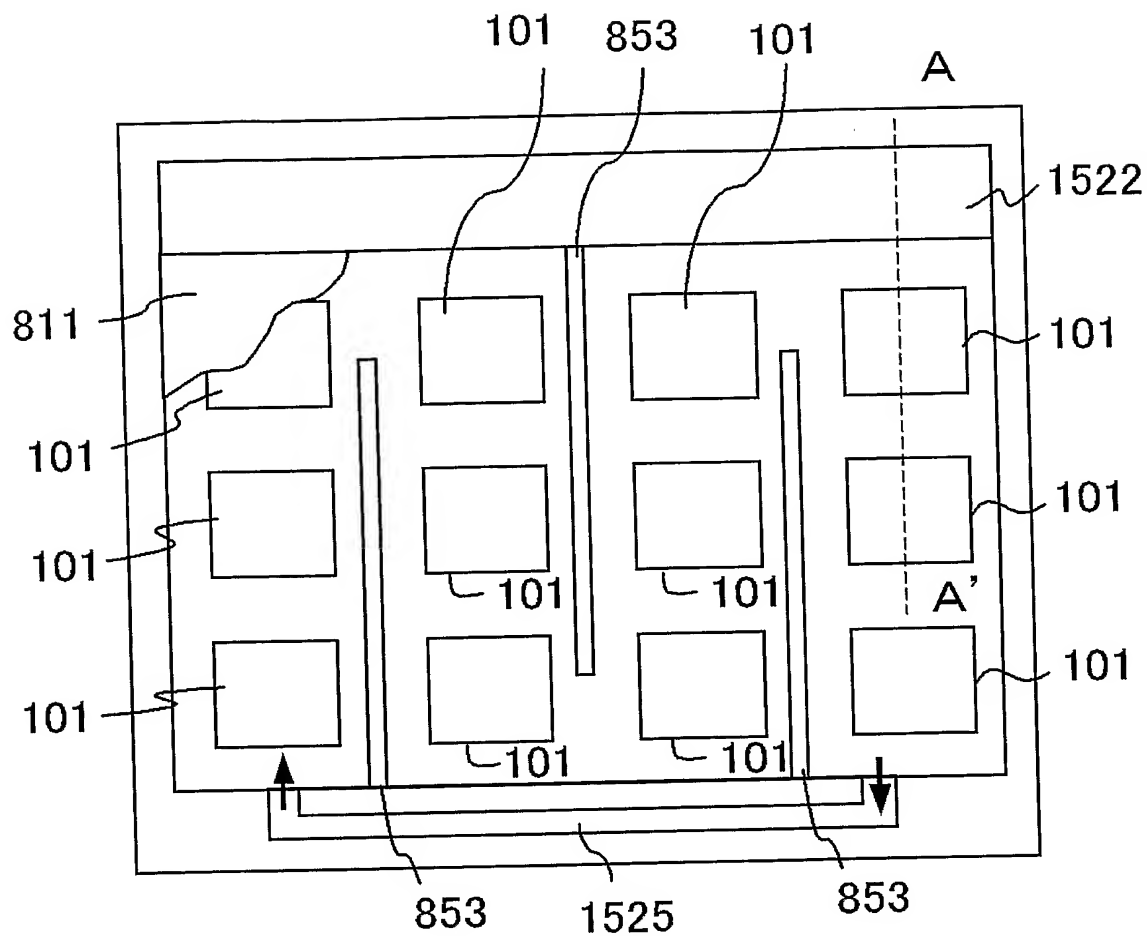
1 0 1 単セル構造  
1 0 2 燃料極  
1 0 4 基体  
1 0 6 燃料極側触媒層  
1 0 8 酸化剤極  
1 1 0 基体  
1 1 2 酸化剤極側触媒層  
1 1 4 固体電解質膜  
1 2 4 燃料  
1 2 6 酸化剤  
7 4 3 回転部  
8 1 1 燃料容器  
8 5 3 仕切板  
1 1 1 7 ポンプ  
1 2 3 4 ピン部  
1 2 3 5 蓋  
1 5 1 6 燃料電池  
1 5 1 7 液体燃料容器  
1 5 1 8 気化燃料容器  
1 5 1 9 気液分離膜  
1 5 2 0 気化燃料導入部  
1 5 2 1 気化燃料  
1 5 2 2 高濃度燃料容器  
1 5 2 3 高濃度燃料  
1 5 2 4 シャッター  
1 5 2 5 回収管  
1 5 2 6 滴下部  
1 5 2 7 燃料吸収部  
1 5 2 8 気化燃料導入管  
1 5 2 9 高濃度燃料補充部  
1 5 3 0 蓋部  
1 5 3 1 スライド板  
1 5 3 2 高濃度燃料カートリッジ  
1 5 3 3 バネ部  
1 5 3 4 スライド板  
1 5 3 5 ストッパー  
1 5 3 6 本体接続部  
1 5 3 7 バネ部  
1 5 3 8 押さえ板  
1 5 3 9 カートリッジ接続部  
1 5 4 0 ストッパー  
1 5 4 1 シール材  
1 5 4 2 フック  
1 5 4 3 測定容器  
1 5 4 4 第一の容器  
1 5 4 5 第二の容器  
1 5 4 6 多孔質 P T F E 膜  
1 5 4 7 可動板  
1 5 4 8 支持部  
1 5 4 9 隔壁

【書類名】 図面  
【図 1】

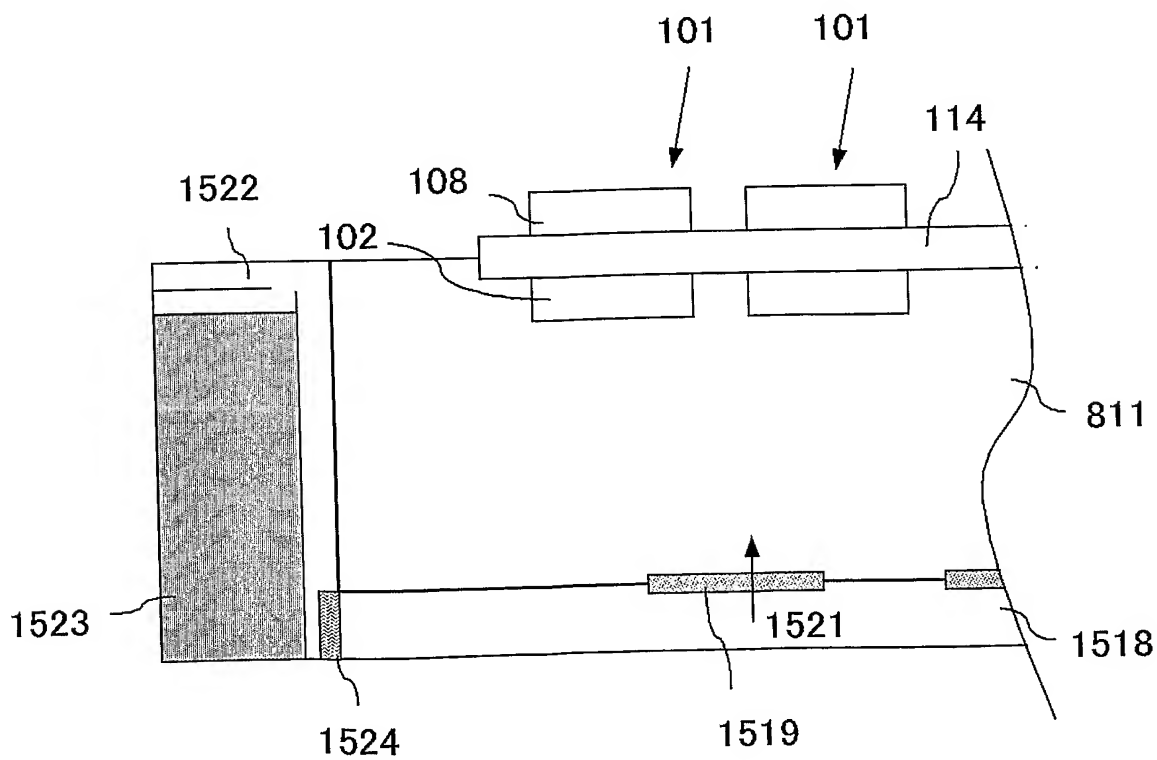




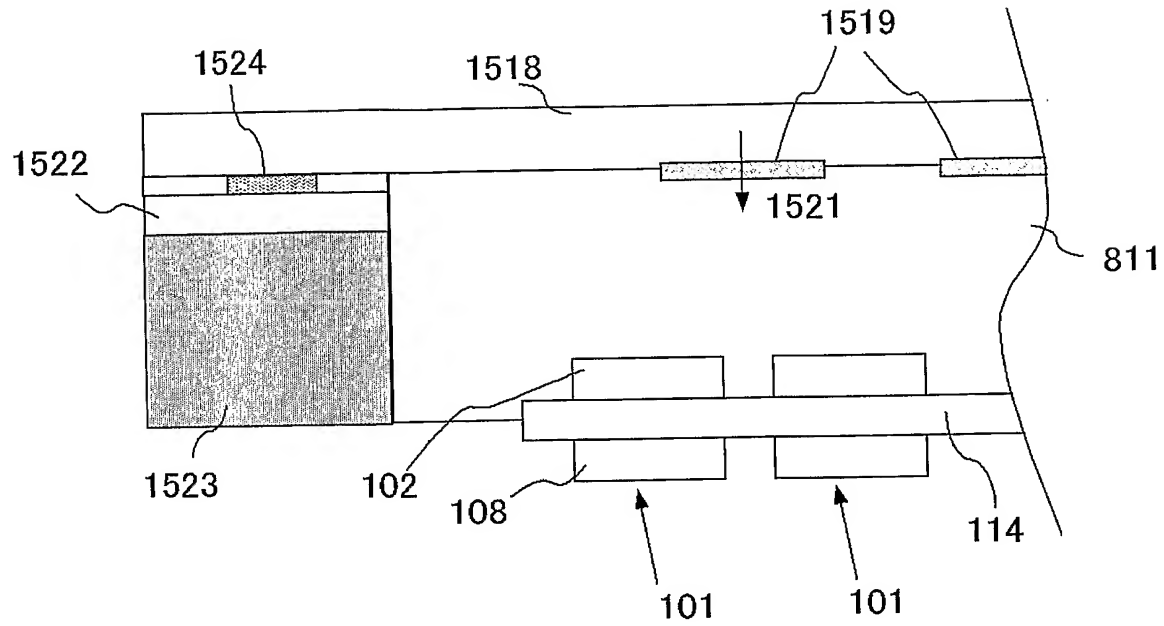
【図 2】



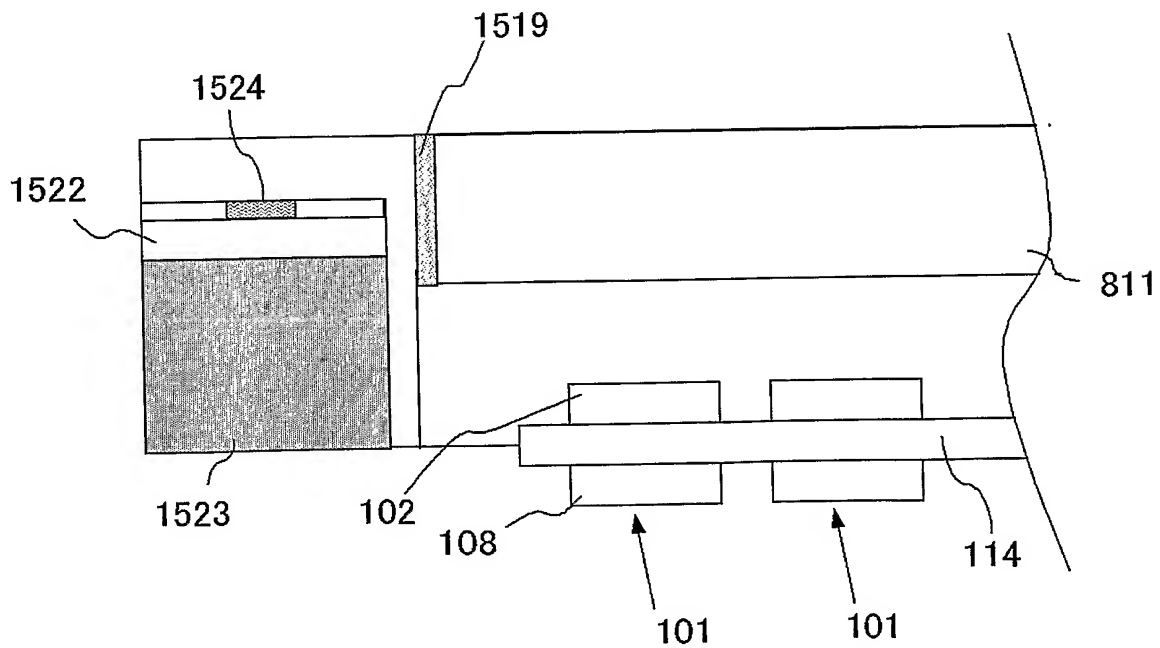
【図 3】



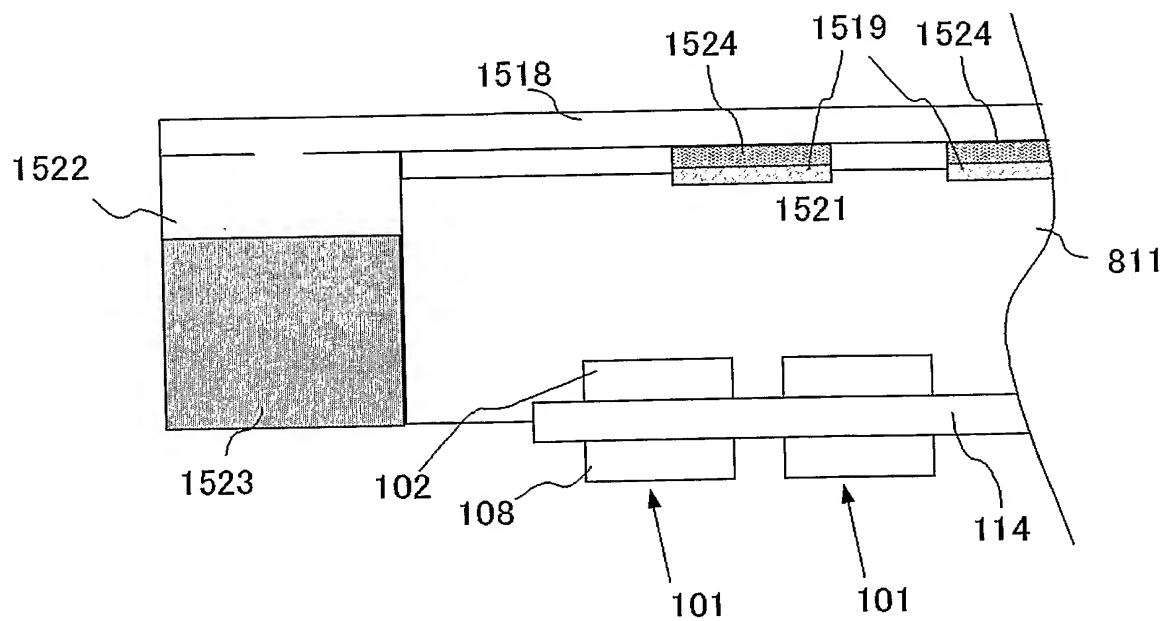
【図 4】



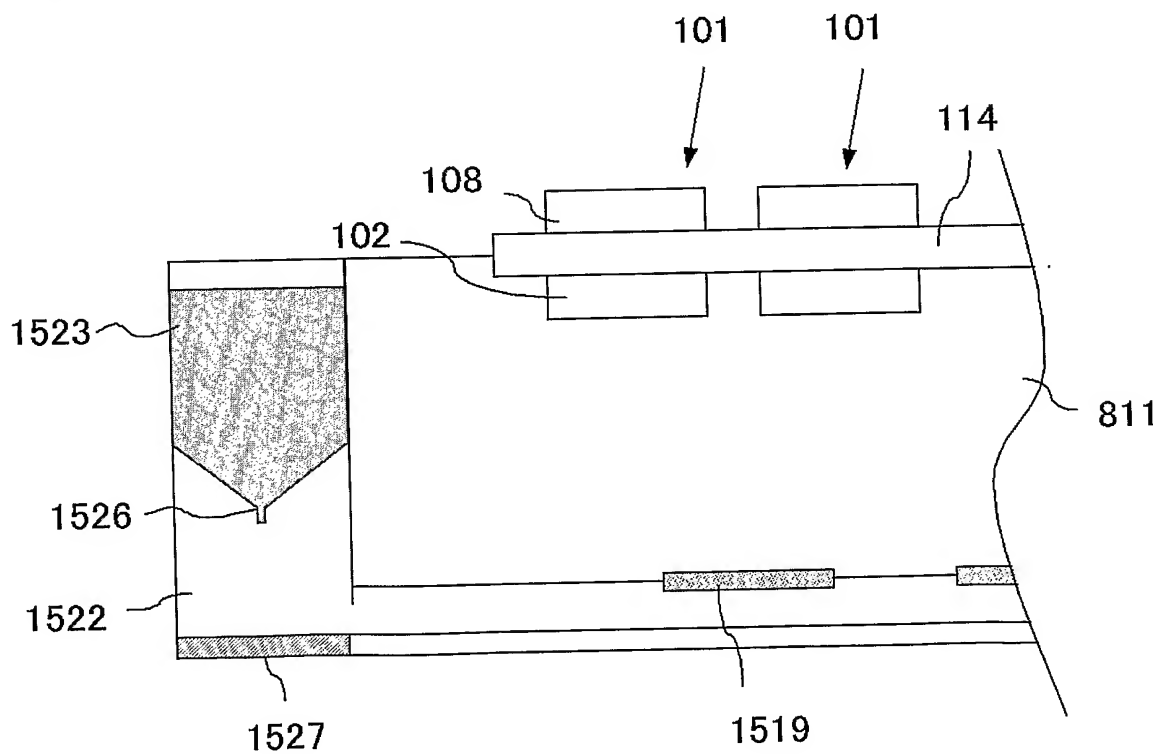
【図 5】



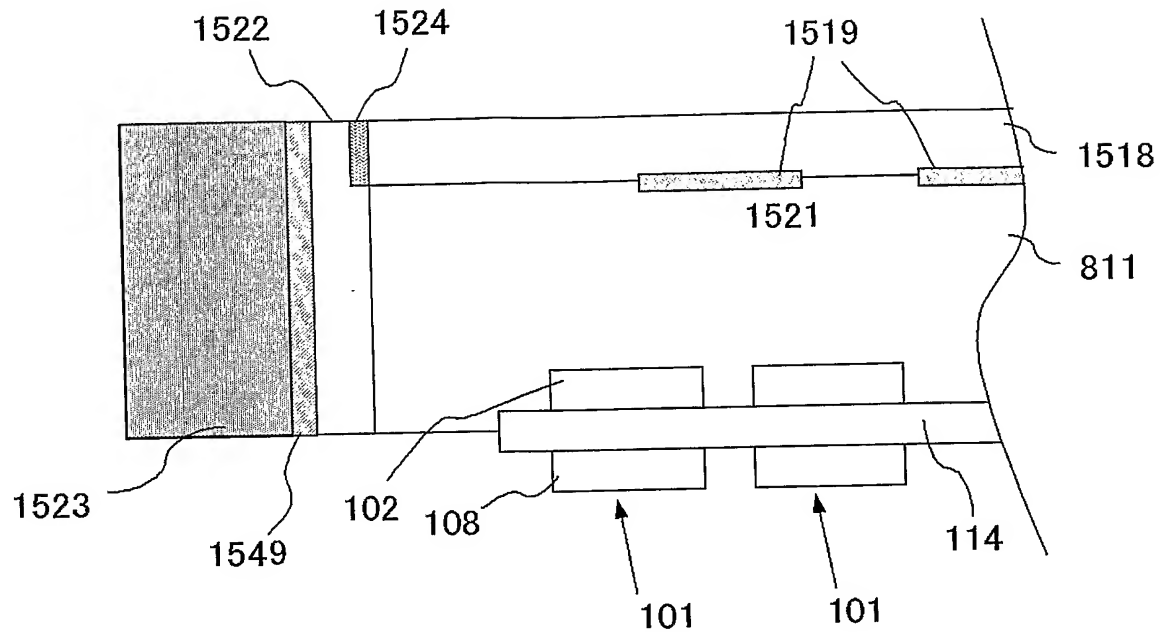
【図 6】



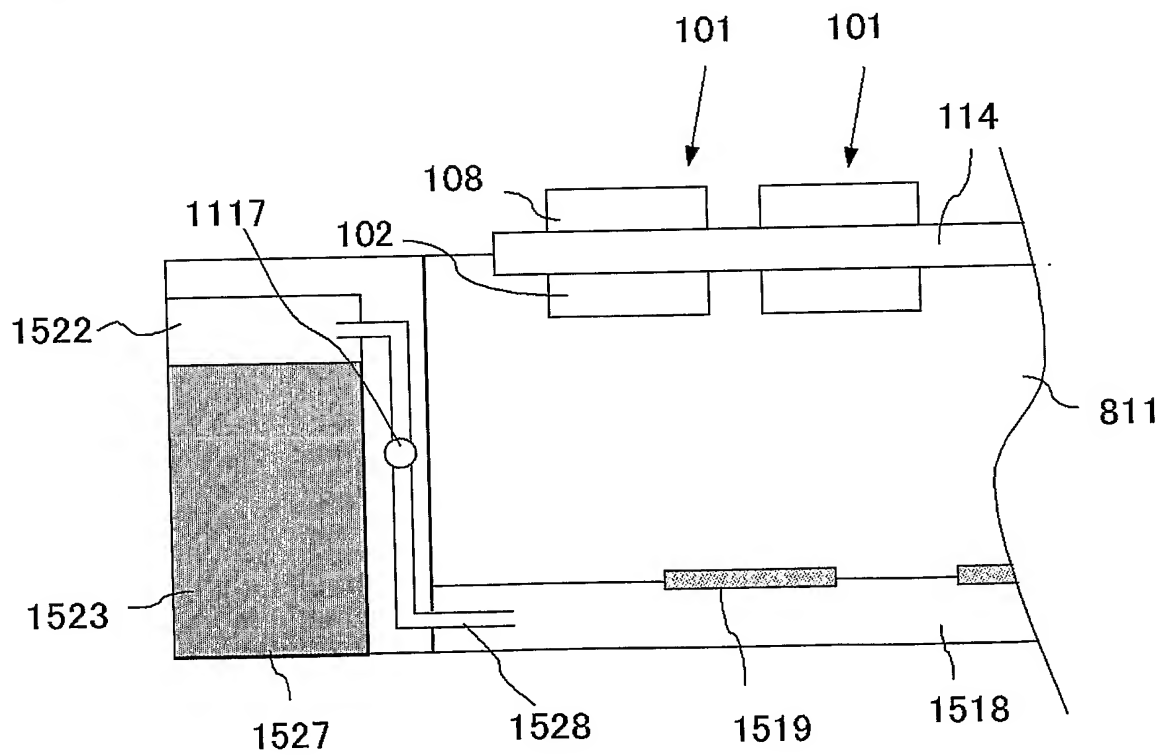
【図 7】



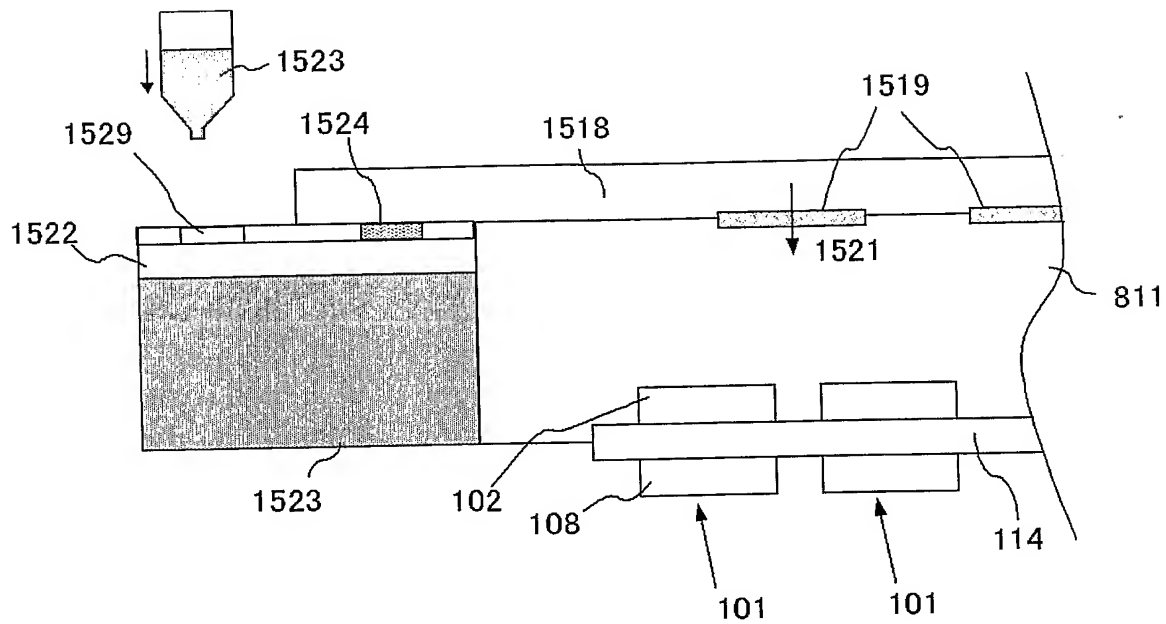
【図 8】



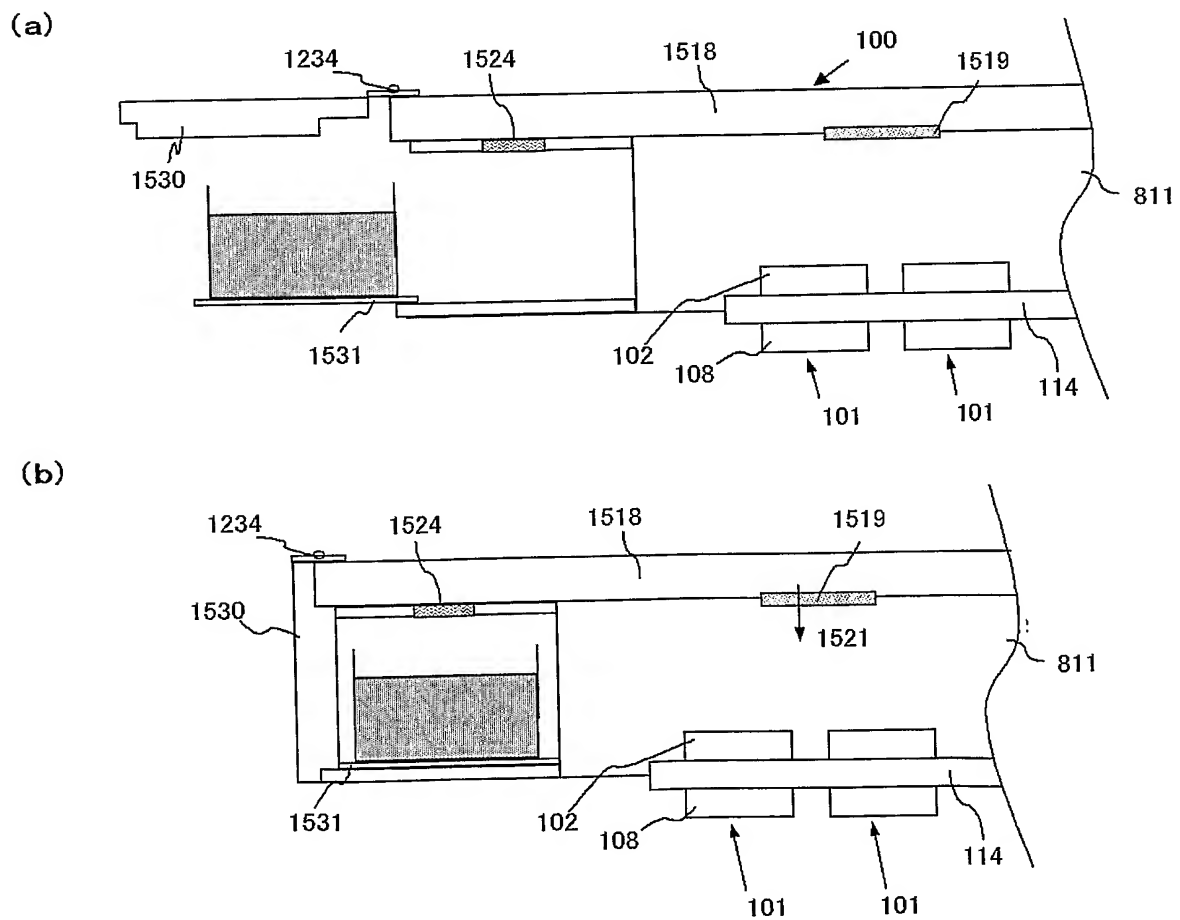
【図 9】



【図 10】

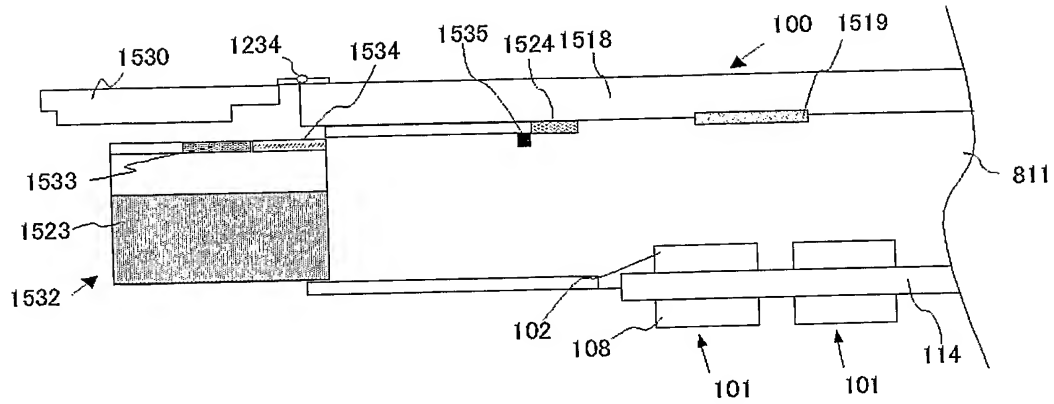


【図 11】

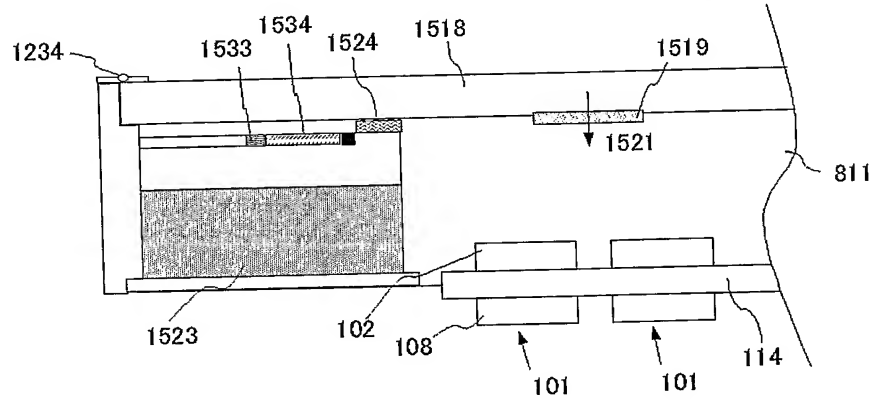


【図 12】

(a)

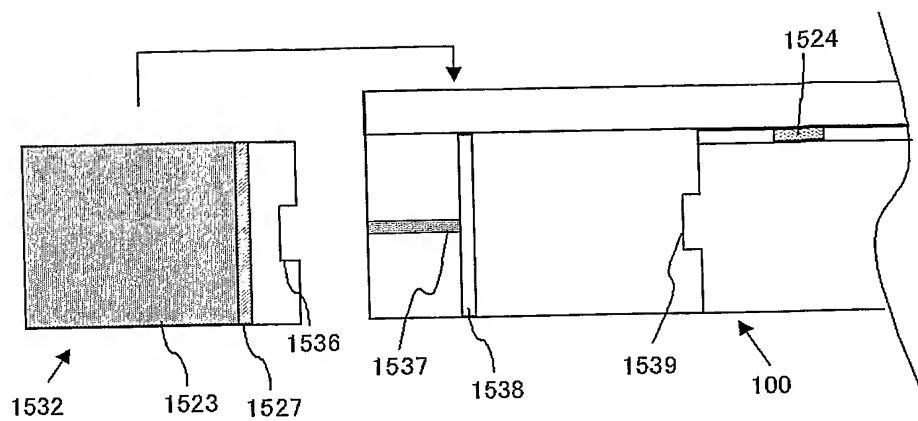


(b)

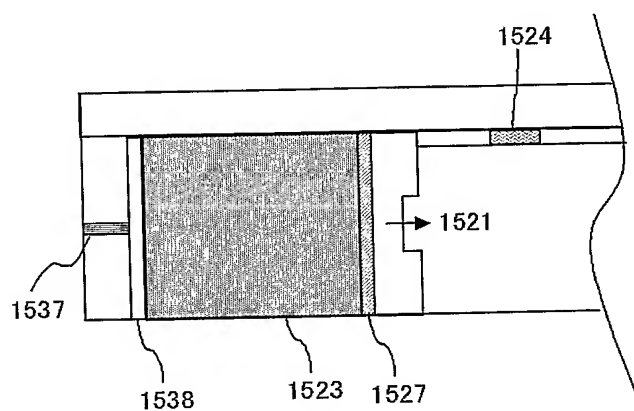


【図 13】

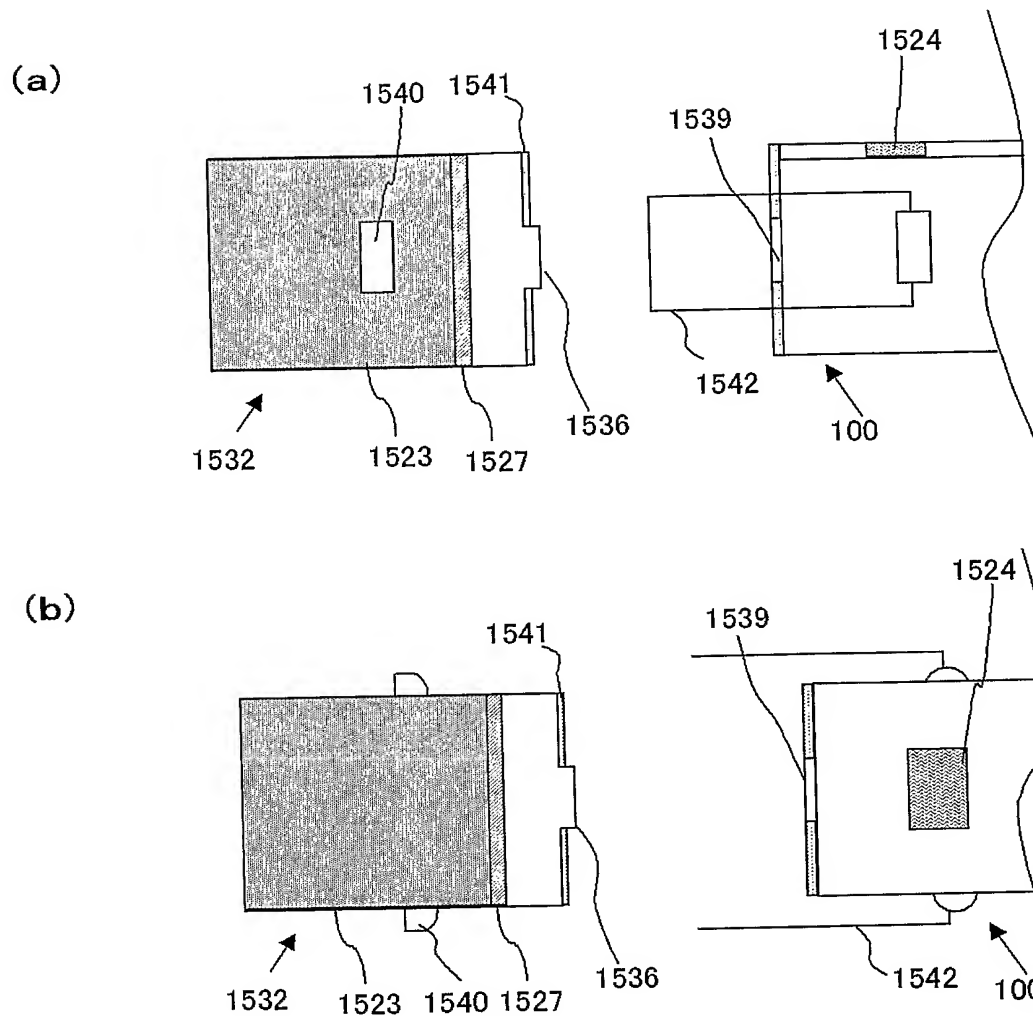
(a)



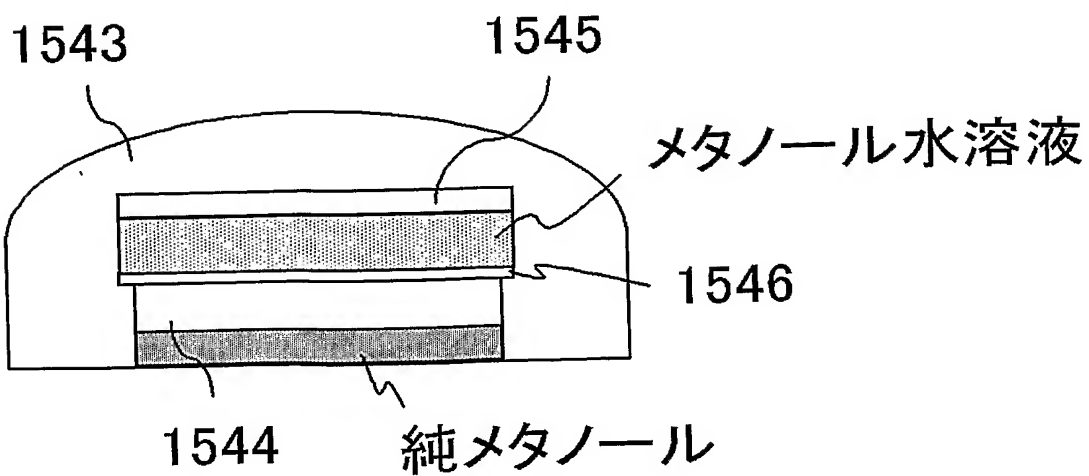
(b)



【図 14】

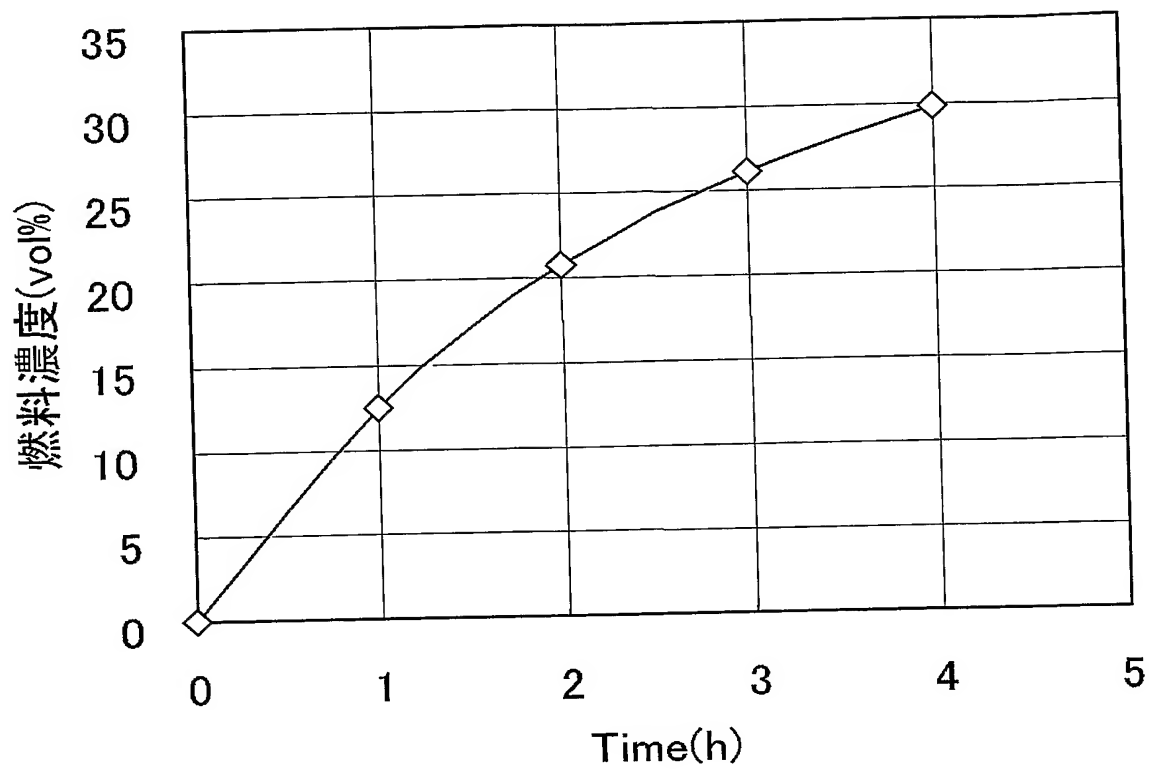


【図 15】

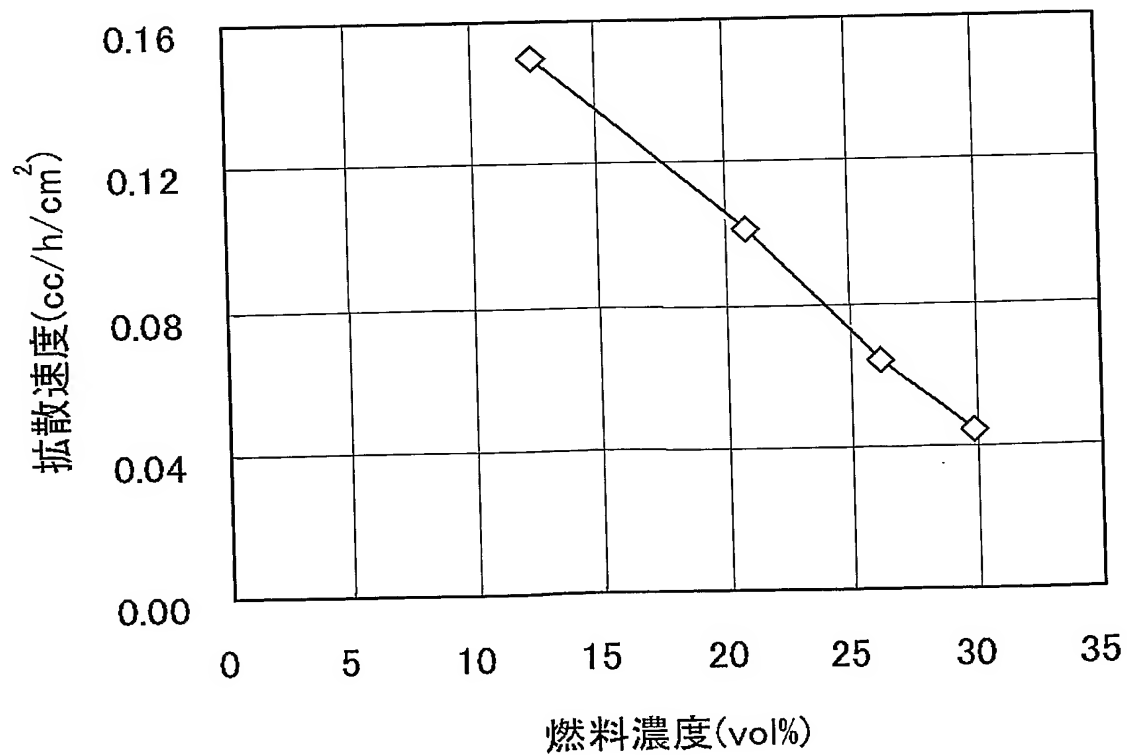




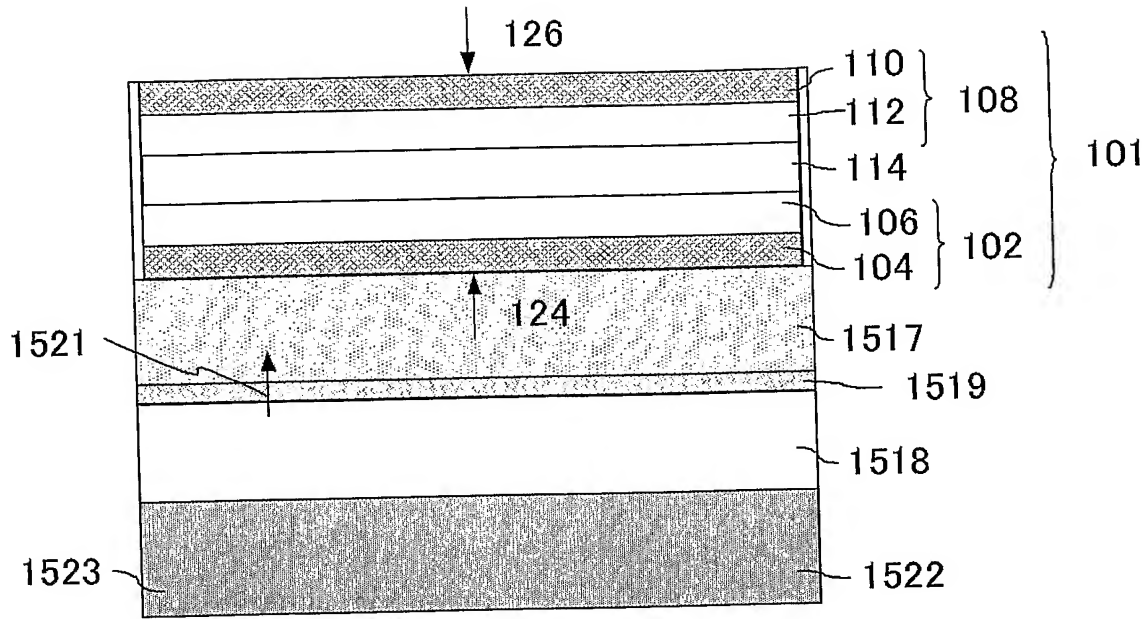
【図 16】



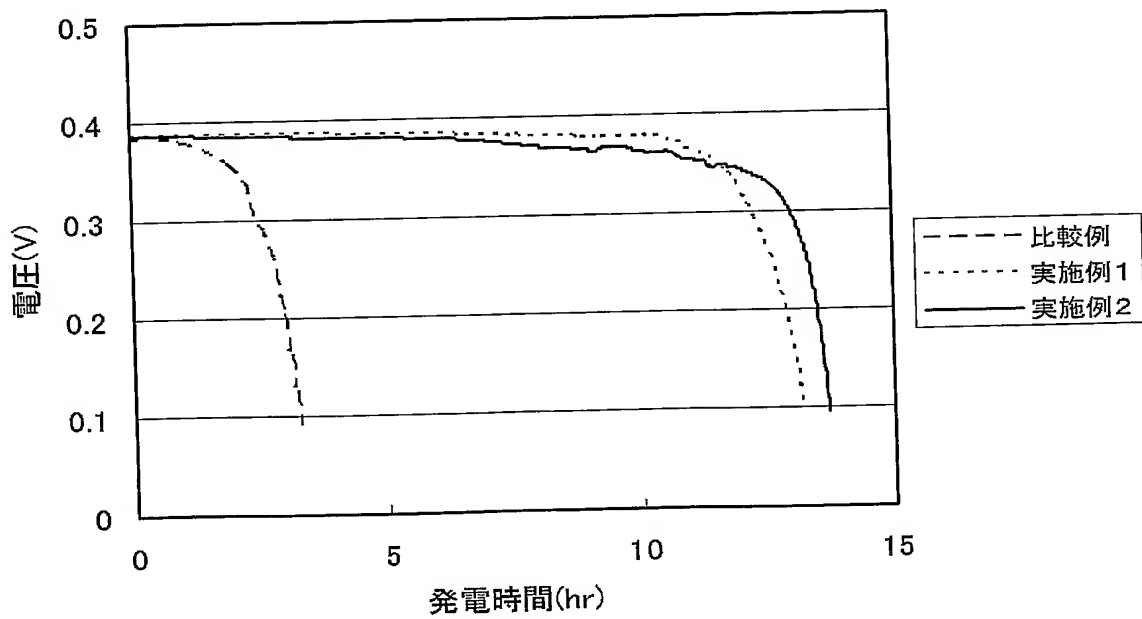
【図 17】



【図 18】

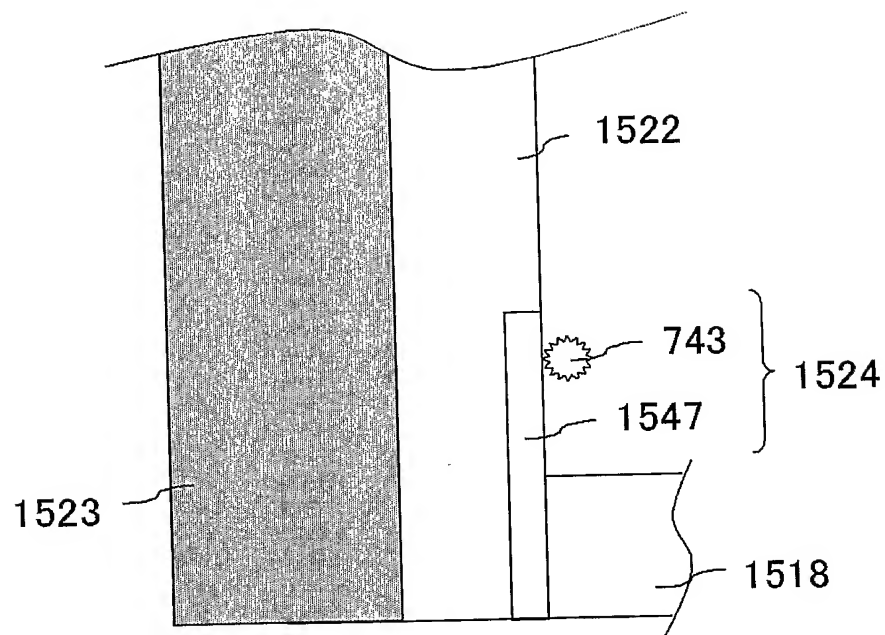


【図 19】

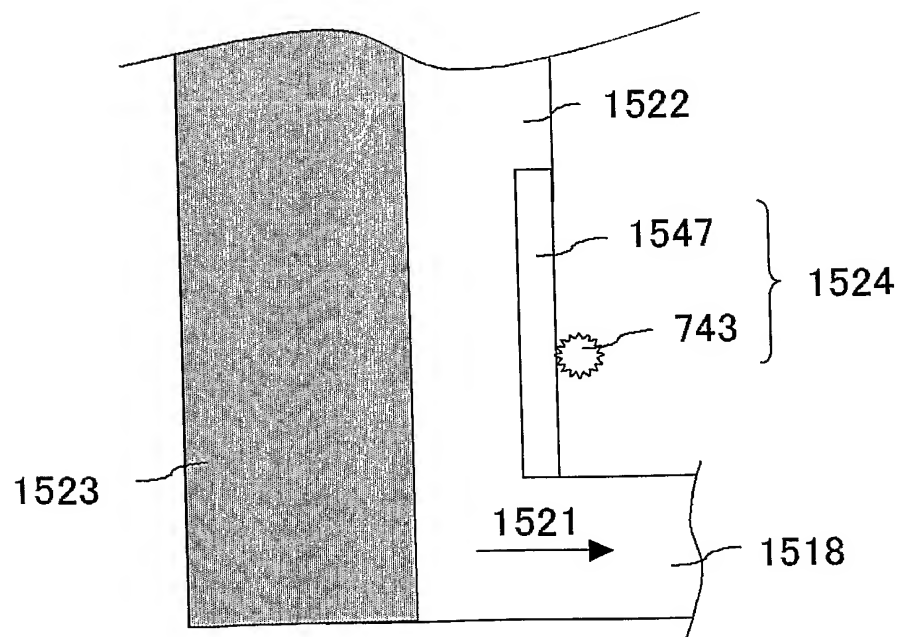


【図 20】

(a)

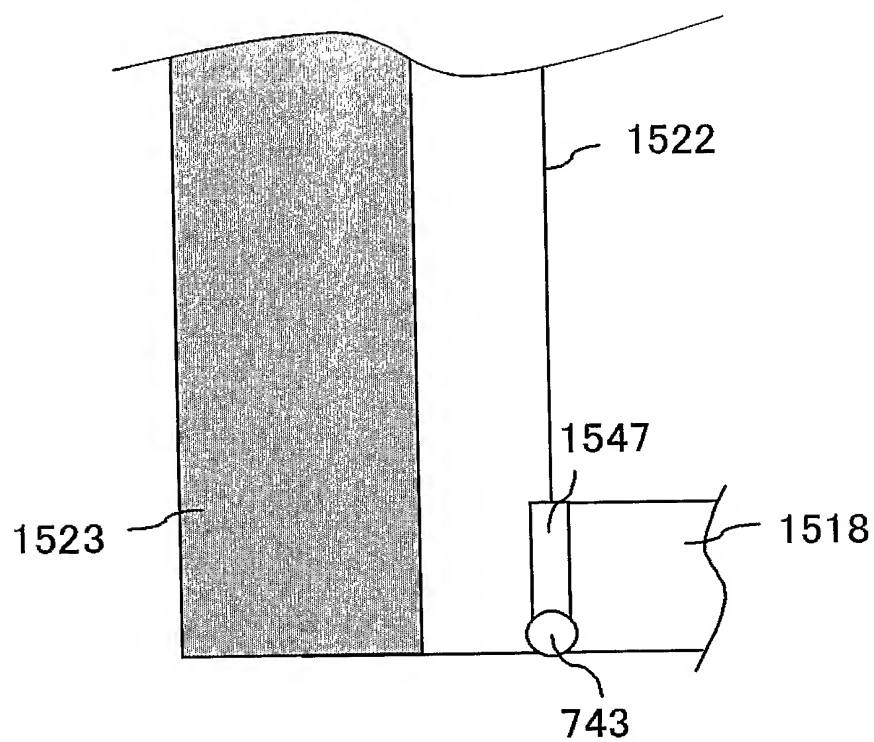


(b)

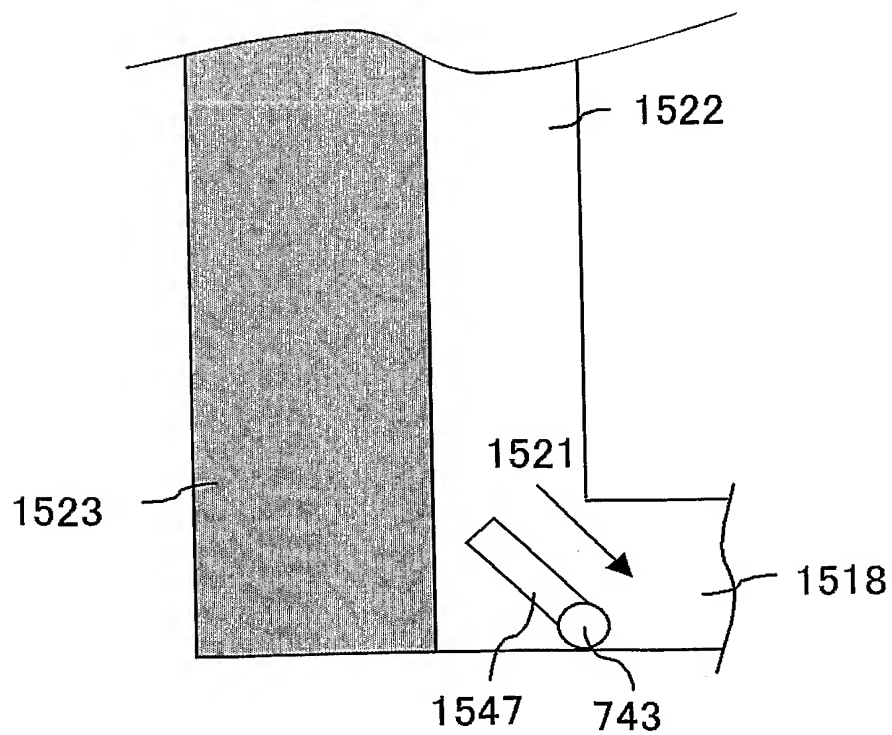


【図 21】

(a)

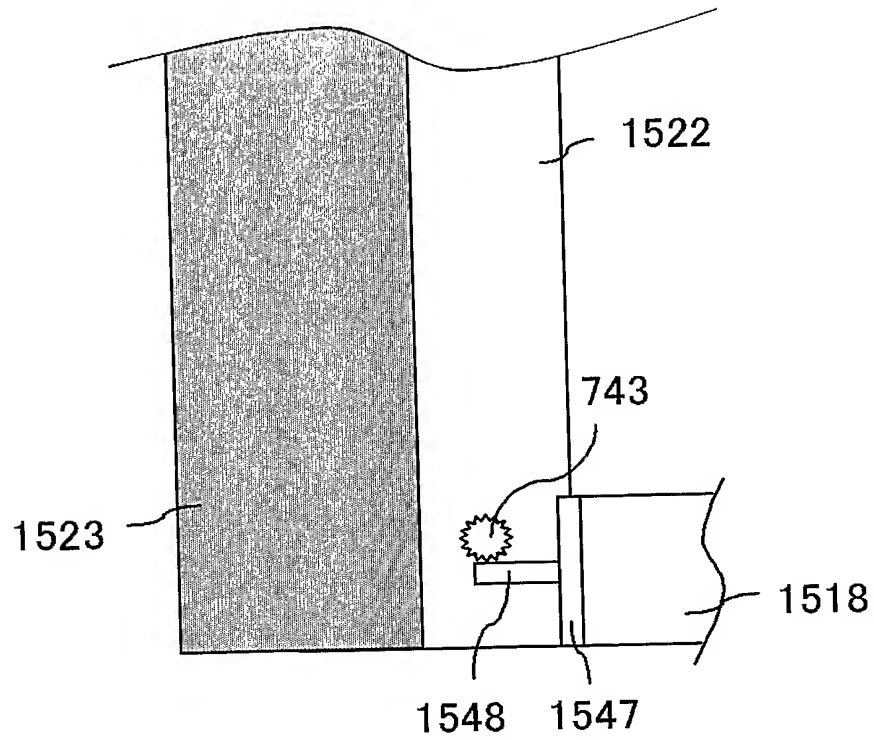


(b)

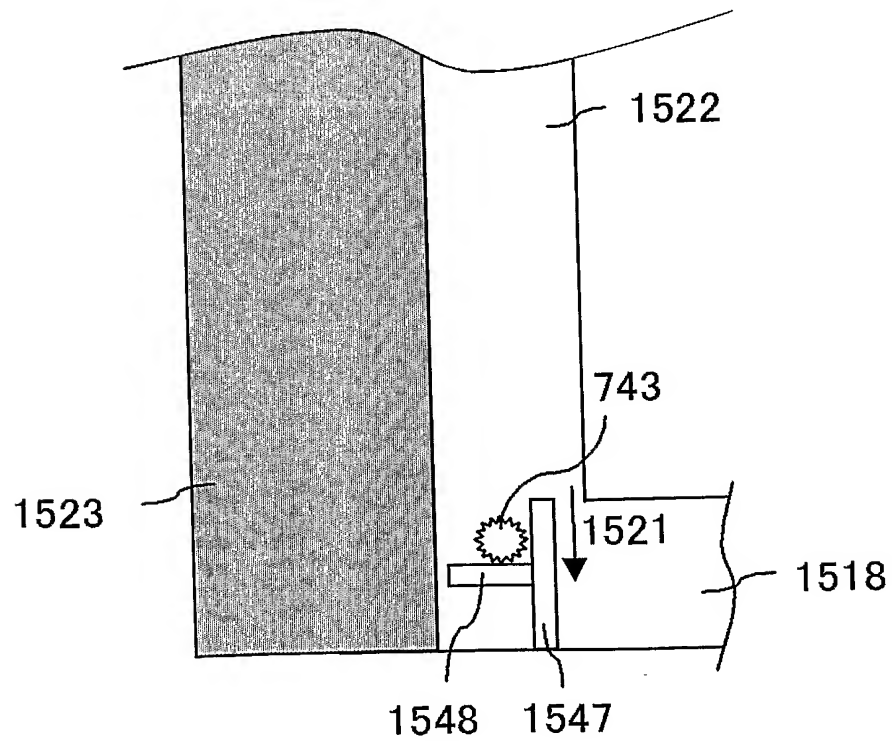


【図 22】

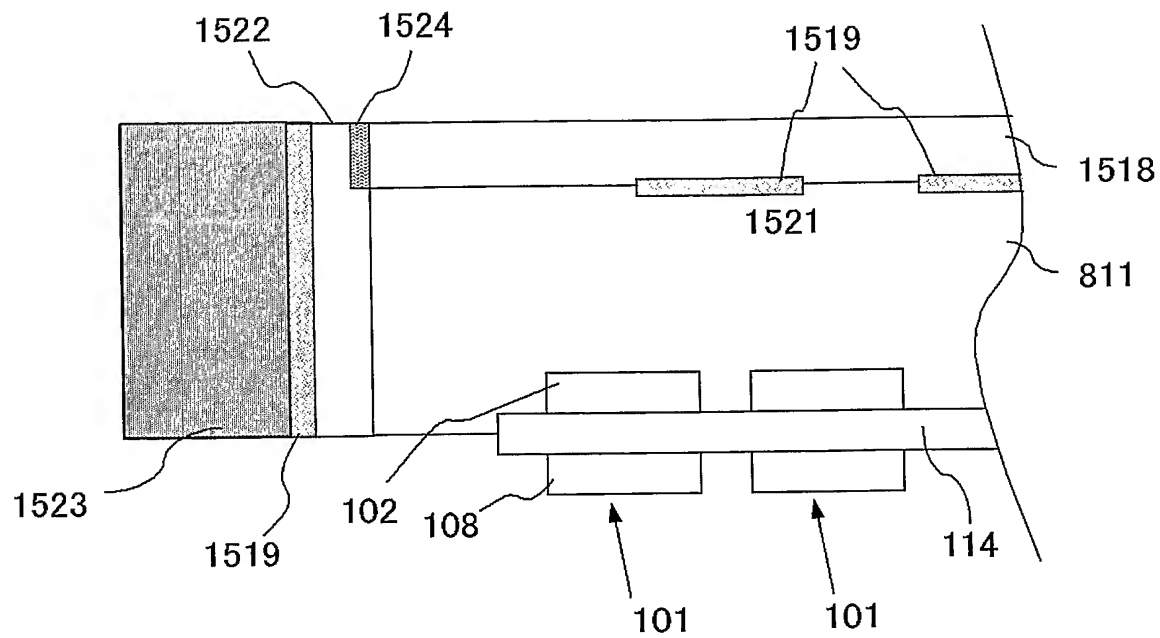
(a)



(b)



【図 23】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池を小型化しつつ、燃料極への燃料の供給を安定的に行う。

【解決手段】 燃料電池 1 5 1 6 において、燃料極 1 0 2 に供給する液体の燃料 1 2 4 を収容する液体燃料容器 1 5 1 7 に気液分離膜 1 5 1 9 を介して連通する気化燃料容器 1 5 1 8 を設ける。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 4 - 0 6 8 2 3 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 4 2 3 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 9 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区芝五丁目 7 番 1 号

氏 名

日本電気株式会社